

ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT, CRYSTAL LIGHTING SYSTEM, DISPLAY DEVICE, AND MANUFACTURE OF ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT

Publication number: JP10125463

Publication date: 1998-05-15

Inventor: IWANAGA HIDEAKI; GYOTOKU AKIRA; HARA SHINTARO; KOMATSU TAKAHIRO; SAKAGAMI MEGUMI

Applicant: MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD

Classification:

- international: G02F1/1335; F21V8/00; G02F1/13357; H01L51/50; H05B33/04; H05B33/06; H05B33/10; H05B33/12; H05B33/26; H01L51/52; F21V8/00; G02F1/13; H01L51/50; H05B33/02; H05B33/04; H05B33/10; H05B33/12; H05B33/26; (IPC1-7): H05B33/04; F21V8/00; G02F1/1335; H05B33/06; H05B33/10; H05B33/26

- European:

Application number: JP19960344831 19961225

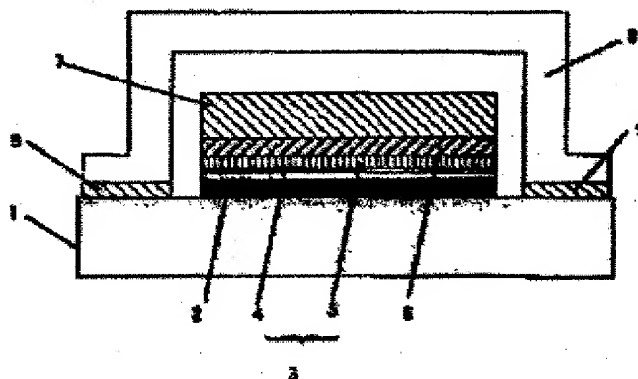
Priority number(s): JP19960344831 19961225; JP19950342827 19951228; JP19960230022 19960830

Report a data error here

Abstract of JP10125463

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an organic electroluminescent element having excellent durability and reliability by adhering a board, on which a positive electrode and an organic thin film layer and a negative electrode are laminated in order, and a shield member to each other with an adhesive member.

SOLUTION: A positive electrode 2 made of ITO or the like, an organic thin film layer 3, which is formed of a hole transporting layer 4 and a light emitting layer 5, and a negative electrode 6 made of Al-Li alloy or the like are laminated in order by resistant heating deposition and ion beam sputtering or the like. Furthermore, an insulating compound layer 7 made of GeO or the like is formed on the negative electrode 6 at need. At the time of adhering the board 1 and a shield member 8 to each other, both they are adhered to each other through an adhesive layer 9 made of low-melting point glass and low-melting solder or the like. With this structure, intrusion of moisture and oxygen into the negative electrode 6 and the organic thin film layer 3 is perfectly shielded, and growth of dark spot in the light emitting layer 5 can be prevented, and a change of luminance with the lapse of time can be restricted.



Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

Family list

3 family members for: JP10125463

Derived from 3 applications

[Back to JP1](#)**1 ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT****Inventor:** GYOTOKU AKIRA; IWANAGA HIDEAKI; **Applicant:** MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD (+2)**EC:** **IPC:** H05B33/04; H01L25/04; H01L51/50 (+6)**Publication info:** JP10041067 A - 1998-02-13**2 ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT, CRYSTAL LIGHTING SYSTEM, DISPLAY DEVICE, AND MANUFACTURE OF ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT****Inventor:** IWANAGA HIDEAKI; GYOTOKU AKIRA; **Applicant:** MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD (+3)**EC:** **IPC:** G02F1/1335; F21V8/00; G02F1/13357 (+21)**Publication info:** JP10125463 A - 1998-05-15**3 Organic electroluminescence element, its manufacturing method, and display device using organic electroluminescence element****Inventor:** GYOTOKU AKIRA (JP); IWANAGA HIDEAKI (JP); (+3) **Applicant:** MATSUSHITA ELECTRICAL IND COMP (US)**EC:** H01L51/52C **IPC:** H01L51/52; H01L51/30; H01L51/50 (+3)**Publication info:** US6195142 B1 - 2001-02-27

Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平10-125463

(43) 公開日 平成10年(1998) 5月15日

(51) Int.Cl.⁶ 識別記号

H 0 5 B 33/04

F 2 1 V 8/00

G 0 2 F 1/1335

H 0 5 B 33/06

33/10

6 0 1

5 3 0

F I

H 0 5 B 33/04

F 2 1 V 8/00

G 0 2 F 1/1335

H 0 5 B 33/06

33/10

6 0 1 A

5 3 0

審査請求 未請求 請求項の数30 O L (全 21 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願平8-344831

(22) 出願日 平成8年(1996)12月25日

(31) 優先権主張番号 特願平7-342827

(32) 優先日 平7(1995)12月28日

(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(31) 優先権主張番号 特願平8-230022

(32) 優先日 平8(1996)8月30日

(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(71) 出願人 000005821

松下電器産業株式会社

大阪府門真市大字門真1006番地

(72) 発明者 岩永 秀明

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

(72) 発明者 行徳 明

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

(72) 発明者 原 慎太郎

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

(74) 代理人 弁理士 滝本 智之 (外1名)

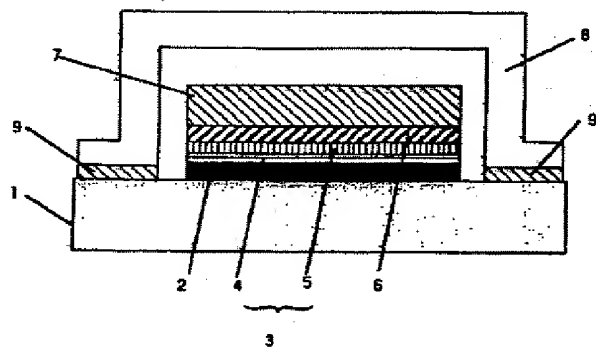
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネセンス素子、液晶照明装置、表示デバイス装置、および、有機エレクトロルミネセンス素子の製造方法

(57) 【要約】

【課題】 耐久性及び信頼性に優れた有機エレクトロルミネセンス素子及び量産性に優れた製造方法並びにこれを用いた装置を提供することを目的とする。

【解決手段】 低融点ガラス、低融点はんだ等を用いてシールド部材を基板に接着して、陰極や有機薄膜層への水分や酸素の進入を遮断することにより、高い信頼性を得る。シールド部材8を溶融するためにレーザ、または、超音波を用いて、局所的に加熱することにより、有機薄膜層3を熱破壊せず確実に接着できる。また、カーボンを介して陽極2と有機薄膜層3を強固に付着して、発光特性の信頼性を向上し、リード線及び陰極を導電性の優れた材料で被覆することにより発光効率を高める。陰極6の材料としてMg含有、MgとLi含有、Mn含有、MnとLi含有のAl系合金のいずれかにして陰極6の耐食性を向上する。



【特許請求の範囲】

【請求項1】基板と、前記基板上に積層された陽極と有機薄膜層と陰極とを有する積層構造体と、前記積層構造体の外表面側を覆って前記基板上に設置されたシールド部材と、前記基板と前記シールド部材との間に設置された接着部材と、を備えた有機エレクトロルミネセンス素子。

【請求項2】前記基板上に前記陽極、前記有機薄膜層、前記陰極の順で積層することを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネセンス素子。

【請求項3】前記陽極の一部あるいは全部がカーボン薄膜よりなることを特徴とする請求項1または2に記載の有機エレクトロルミネセンス素子。

【請求項4】前記積層構造体が、陽極とカーボン薄膜と有機薄膜層と陰極を基板上に積層して形成したものであることを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネセンス素子。

【請求項5】前記基板上に陽極、カーボン薄膜、有機薄膜層、陰極の順で積層することを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネセンス素子。

【請求項6】前記接着部材の少なくとも一部が、前記基板と前記シールド部材を接着することを特徴とする請求項1～5のいずれかに記載の有機エレクトロルミネセンス素子。

【請求項7】前記有機薄膜層が、前記陽極と前記陰極に電圧を印加したとき発光することを特徴とする請求項1～6のいずれかに記載の有機エレクトロルミネセンス素子。

【請求項8】前記基板が、透明、半透明の基板の内のいずれか1つからなることを特徴とする請求項1～7のいずれかに記載の有機エレクトロルミネセンス素子。

【請求項9】前記接着部材が、低融点ガラス、低融点はんた、液晶ポリマーの内のいずれか1つからなることを特徴とする請求項1～8のいずれかに記載の有機エレクトロルミネセンス素子。

【請求項10】前記接着部材が、500℃以下の融点を有することを特徴とする請求項1～9のいずれかに記載の有機エレクトロルミネセンス素子。

【請求項11】前記低融点ガラスが、 $Pb-B-Sn-Si-Al-O$ 化合物、 $Sn-Pb-O-F$ 化合物、 $Pb-Sn-P-O-Cl$ 化合物、 $PbO-SnO-P_2O_5$ 化合物の低融点ガラスの内のいずれか1つからなることを特徴とする請求項9記載の有機エレクトロルミネセンス素子。

【請求項12】前記シールド部材が、電気絶縁性ガラス、ステンレスの内のいずれかからなることを特徴とする請求項1～11のいずれかに記載の有機エレクトロルミネセンス素子。

【請求項13】前記シールド部材が、キャップ形状であることを特徴とする請求項12に記載の有機エレクトロ

ルミネセンス素子。

【請求項14】前記積層構造体と前記シールド部材の間に、前記積層構造体を覆って設置された保護膜を備えたことを特徴とする請求項1～13のいずれかに記載の有機エレクトロルミネセンス素子。

【請求項15】前記接着部材が低融点はんたからなり、前記保護膜が電気絶縁性化合物層であって、前記陽極と前記陰極とを電氣的に絶縁することを特徴とする請求項14に記載の有機エレクトロルミネセンス素子。

【請求項16】前記保護膜の膜厚が $3\mu m \sim 30\mu m$ であることを特徴とする請求項14に記載の有機エレクトロルミネセンス素子。

【請求項17】前記保護膜が少なくとも最下層に絶縁性化合物層と最上層に金属層を有する2層以上の積層膜であることを特徴とする請求項14に記載の有機エレクトロルミネセンス素子。

【請求項18】前記基板または前記シールド部材の少なくとも一方の接着面に電気絶縁性パツファ層が設置されることを特徴とする請求項1～17のいずれかに記載の有機エレクトロルミネセンス素子。

【請求項19】前記電気絶縁性パツファ層が SiO_2 、 SiO のいずれかであることを特徴とする請求項18記載の有機エレクトロルミネセンス素子。

【請求項20】前記陰極がMgを含有するAl系合金、MgとLiを含有するAl系合金、Mnを含有するAl系合金、MnとLiを含有するAl系合金の内いずれか1つからなることを特徴とする請求項1～19のいずれかに記載の有機エレクトロルミネセンス素子。

【請求項21】請求項1～20のいずれか1に記載の有機エレクトロルミネセンス素子と、前記陽極と前記陰極を駆動するために前記基板上に設けた電極駆動用ICと、前記電極駆動用ICを接続するために前記基板上に配設されたリード線と、を備えたことを特徴とする有機エレクトロルミネセンス素子部品。

【請求項22】前記リード線が積層構造を有し、上層の導電率が下層の導電率より高いことを特徴とする請求項21に記載の有機エレクトロルミネセンス素子部品。

【請求項23】前記陰極が積層構造を有し、上層の導電率が下層の導電率より高いことを特徴とする請求項21または22に記載の有機エレクトロルミネセンス素子部品。

【請求項24】請求項1～20のいずれかに記載の有機エレクトロルミネセンス素子と、前記陽極と前記陰極を駆動する手段と、前記有機エレクトロルミネセンス素子の前面側に設置された液晶パネルと、を備え、前記有機エレクトロルミネセンス素子に電圧を印加することにより照明することを特徴とする液晶照明装置。

【請求項25】請求項1～20のいずれかに記載の有機エレクトロルミネセンス素子と、前記陽極と前記陰極を

駆動する手段と、前記有機エレクトロルミネセンス素子の前面側に設置された液晶パネルと、を備え、前記有機エレクトロルミネセンス素子にマトリックス方式の電圧を印加することにより表示機能を有することを特徴とする表示デバイス装置。

【請求項26】基板上に陽極と有機薄膜層と陰極とを積層して積層構造体を作る工程と、前記基板上に接着部材を介して前記積層構造体の外表面側を被覆するシールド部材を設置する工程と、前記接着部材を溶融する工程と、前記溶融された接着部材を用いて前記基板と前記シールド部材とを接着する工程と、を備えた有機エレクトロルミネセンス素子の製造方法。

【請求項27】前記積層構造体を作る工程が、基板上に陽極とカーボン薄膜と有機薄膜層と陰極とを積層する工程であることを特徴とする請求項26に記載の有機エレクトロルミネセンス素子の製造方法。

【請求項28】前記基板が、透明または半透明の基板であることを特徴とする請求項26または27に記載の有機エレクトロルミネセンス素子の製造方法。

【請求項29】前記接着部材が、低融点ガラス、低融点はんだ、液晶ポリマーの内のいずれか1つからなることを特徴とする請求項26～28のいずれかに記載の有機エレクトロルミネセンス素子の製造方法。

【請求項30】前記接着部材を溶融する工程が、レーザ加工を用いて溶融する工程、または、超音波を用いて溶融する工程の内のいずれかからなることを特徴とする請求項26～29のいずれかに記載の有機エレクトロルミネセンス素子の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は液晶表示用ディスプレイ用の発光光源、ディスプレイのバックライト用の発光光源、あるいは、表示・光通信の発光光源などに用いられる電氣的発光素子である有機エレクトロルミネセンス素子、および、有機エレクトロルミネセンス素子を用いた装置、ならびに、有機エレクトロルミネセンス素子の製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】エレクトロルミネセンス素子とは、固体蛍光性物質の電界発光または、エレクトロルミネセンスといわれる現象を利用した発光デバイスであり、現在無機系材料を発光体として用いた無機エレクトロルミネセンス素子が実用化され、液晶ディスプレイのバックライトやフラットディスプレイ等への応用展開が図られている。しかしながら、無機エレクトロルミネセンス素子は素子を発光させるために交流でしかも100V以上の高電圧が必要であること及び青色発光が難しく、R. G. B. すなわち、Red、Green、Blueの三原色によるフルカラー化が困難であることなどの欠点がある。

【0003】一方、有機材料を用いたエレクトロルミネセンス素子に関する研究も古くから行われていたが、非常に効率が悪いと、低い輝度しか得られず本格的な実用化研究には至っていなかった。しかし、1987年にコダック社のC. W. Tangらにより提案された構造つまり、有機物質をホール輸送層および発光層5の2層に分けた機能分離型の積層構造を有する有機エレクトロルミネセンス素子は、10V以下の低電圧にもかかわらず1000cd/m²以上の高輝度発光を実現した。

(C. W. Tang and S. A. Vanslyke: Appl. Phys. Lett., 51 (1987) 913) ただし、cdはカンデラの略称である。このことにより、有機エレクトロルミネセンスがにわかに注目され、近年同様の構成を有する積層型の有機エレクトロルミネセンス素子についての研究が盛んに行われてきている。

【0004】ここで従来の有機薄膜エレクトロルミネセンス素子構成について図15で簡単に説明する。図15は、従来の有機エレクトロルミネセンス素子の要部断面図である。

【0005】図15において、1は基板1、2は陽極2、3は有機薄膜層3、4は正孔輸送層4、5は発光層5、6は陰極6である。

【0006】図15に示したように従来の有機エレクトロルミネセンス素子は、ガラス等の透明又は半透明な基板1と、基板1上にスパッタリング法や蒸着法等により形成されたITO等の透明な導電性膜からなる陽極2と、陽極2上に蒸着法等により形成されたTPD、すなわち、N, N'-ジフェニル-N, N'-ビス(3-メチルフェニル)-1, 1'-ジフェニル-4, 4'-ジアミン、(以下、TPDと略称する)等からなる正孔輸送層4と、正孔輸送層4上に蒸着法等により形成された8-ハイドロキシキノリンアルミニウム(8-Hydroxyquinoline Aluminum、以下、Alq₃と略称する。)等からなる発光層5と、発光層5上に蒸着法等により形成された金属膜等からなる陰極6と、を備えている。陰極6は、主に、AlLi、Mg、Agなどの仕事関数の低い金属膜からなる。

【0007】また、図15に示した有機エレクトロルミネセンス素子における有機薄膜層3は正孔輸送層4と発光層5から構成されている。

【0008】上記構成を有する有機エレクトロルミネセンス素子の陽極2をプラス極として、また陰極6をマイナス極として直流電圧又は直流電流を印加すると、陽極2から正孔輸送層4を介して発光層5に正孔が注入され、陰極6から発光層5に電子が注入される。発光層5では正孔と電子の再結合が生じ、これに伴って生成される励起子が励起状態から基底状態へ移行する際に発光現象が起こる。また、有機薄膜層3を構成する層構造や発光層5に用いる材料を変えることによって、発光波長を

変えることができる。また、このような有機エレクトロルミネセンス素子の発光特性を向上させるために、これまで、1) 発光層5や正孔輸送層4等の有機薄膜層3の構成やこれに用いる有機材料の改良、又は2) 陽極2、陰極6に用いる材料の改良が検討されてきた。

【0009】例えば、2) については、発光層5へ電子の注入が容易となるように陰極6と発光層5との障壁を低くすることを目的として、米国特許4885211号公報に記載のMg-Ag合金や特開平5-121172号公報に記載のAl-Li合金等のような仕事関数が小さく、かつ電気伝導性の高い材料が提案され、現在でもこのような材料が広く用いられている。

【0010】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、これらの合金材料は活性が高く、化学的に不安定であるために、空気中の水分や酸素との反応によって腐食や酸化を生じる。このような陰極6の腐食や酸化は、発光層5内に存在するダークスポットと呼ばれる未発光部を著しく成長させ、有機エレクトロルミネセンス素子における経時的な特性劣化の原因となっている。

【0011】また、陰極6に限らず、発光層5や正孔輸送層4等の有機薄膜層3に用いられる有機材料についても、一般に水分や酸素との反応によって構造の変化を生じるため、同様にダークスポットの成長を招く原因となる。

【0012】したがって、有機エレクトロルミネセンス素子の耐久性や信頼性を高めるためには、陰極6や有機薄膜層3に用いる材料と水分や酸素との反応を防止するために、有機エレクトロルミネセンス素子全体が封止されている必要がある。

【0013】有機エレクトロルミネセンス素子の封止については、これまで主に二つの方法による検討が行われてきた。その一つは、蒸着法等の真空成膜技術を用いて有機エレクトロルミネセンス素子の外表面に保護膜を形成するものであり、他方は、ガラス製キャップ等からなるシールド部材を有機エレクトロルミネセンス素子に接着するものである。

【0014】保護膜を形成して有機エレクトロルミネセンス素子を封止する方法については、例えば特開平6-96858号公報にGeO、SiO、AlF₃等をイオンプレーティング法を用いて有機エレクトロルミネセンス素子の外表面に形成する方法が開示されている。また、特開平7-211455号公報では、吸水率1%以上の吸水物質と吸収率0.1%以下の防湿性物質からなる保護膜を形成する方法が開示されている。

【0015】また、シールド部材を接着して有機エレクトロルミネセンス素子を封止する方法としては、無機エレクトロルミネセンス素子で既に用いられているように、背面電極の外側にガラス板を設け、背面電極とガラス板の間にシリコンオイルを封入する方法等がある。

この他にも、特開平5-089959号公報には、絶縁性無機化合物からなる保護膜を形成した後、電気絶縁ガラスまたは、電気絶縁性気密流体によりシールドする方法が開示されている。電気絶縁性気密流体によりシールドする方法の場合、ガラス容器等のなかに、不活性ガスやシリコンオイル等を封入して、開口部をエポキシ樹脂等で接着する方法が示されている。

【0016】本発明者らは、ダークスポットの成長に関して様々な観点から検討した結果、例えば10⁻⁴Torr程度の真空中に存在するような極微量の水分であっても、ダークスポットの成長を促進させてしまうことを発見した。

【0017】また、ダークスポットの発生原因は、主としてITO膜等の陽極上の汚れや基板1に付着するダストに起因している。ITO膜の場合、その表面上の汚れは洗浄方法を工夫することによりほぼ解決できるが、基板1に付着するダストを完全にゼロにすることは困難である。例えば、有機エレクトロルミネセンス素子の製造をクリーンルーム内で行っても、クラス100のクリーンルームでさえ3μm程度の粒子径のダストが1個/10リットル存在する。さらに、製造過程で用いられる蒸着装置内にも多数のダストが存在しており、成膜時にダストが基板1に付着する場合も多々ある。したがって、クリーン度の高いクリーンルームで作業したとしても、基板1上にはかなり高い割合でダストが存在することになり、ダークスポットの発生自体を完全に防止することは極めて困難である。

【0018】また、ダークスポットは基板1上に存在する数μm程度のダストが原因であるため、従来の有機エレクトロルミネセンス素子のように、0.1μm程度の有機薄膜層3と、0.2μm程度の陰極6と、これらの上に形成される0.5μm程度の保護膜では、全てを合計した膜厚は1μm程度であるためダストを完全に覆い隠すことができない。したがって、保護膜自体としては酸素や水分を全く透過しない性質を有していたとしても、ダストを保護膜によって完全に覆い隠すことはできなければ、結果的にダストの周辺部から酸素や水分が有機薄膜層3や陰極6に進入して、ダークスポットを成長させることになる。

【0019】したがって、ダークスポットの成長を完全に無くすには、陰極6や有機薄膜層3に用いる材料への水分や酸素の進入をほぼ完全に遮断する必要がある。

【0020】ところで、有機エレクトロルミネセンス素子に用いられる有機材料については、その特性上、製造工程で許容される加熱温度は100℃程度が上限である。したがって、蒸着法等により保護膜を形成する場合にもこの温度を超えることはできないが、保護膜として用いられるGeO、SiO、SiO₂等の酸化物については、一般に100℃程度の低温では十分に緻密な膜を形成することが困難であり、このような成膜条件では膜

に欠陥やピンホールが多数存在して水分や酸素を完全には遮断できない。また、膜厚を厚くすることでこれら問題を改善しようとしても、膜厚の増加に伴って保護膜の内部応力が増加し、陰極6や有機薄膜層3にダメージを与えて発光輝度の低下や有機エレクトロルミネセンス素子の短絡を生じさせる可能性がある。

【0021】また、従来より試みられているシールド部材による封止もこれまでのところ完全にダークスポットの成長を抑えるには至っていない。前述した特開平5-089959号公報に記載されている電気絶縁ガラスと基板1との接着に用いられるエポキシ樹脂は一般に $3 \sim 5$ ($\text{g}/\text{m}^2 \cdot 24 \text{h}/\text{mm}$)、またポリイミド樹脂でも2 ($\text{g}/\text{m}^2 \cdot 24 \text{h}/\text{mm}$) 程度の水蒸気透過性があり、接着部分からの水分の進入を完全に抑えることはできない。

【0022】このように従来の有機エレクトロルミネセンス素子に用いられてきた保護膜やガラスキャップによる接着ではダークスポットの成長を完全に抑えることは不可能であった。

【0023】本発明は上記課題を解決するものであり、長期の特性を保証する耐久性及び信頼性に優れた有機エレクトロルミネセンス素子、液晶照明装置、表示デバイス装置、および、有機エレクトロルミネセンス素子の製造方法の提供を目的とする。

【0024】

【課題を解決するための手段】上記課題を解決するために、本発明の有機エレクトロルミネセンス素子、および、液晶照明装置、表示デバイス装置は、基板と基板上に積層された陽極と有機薄膜層と陰極とを有する積層構造体と、積層構造体の外表面側を覆って、基板上に設置されたシールド部材と、基板とシールド部材との間に設置された接着部材とを備え、接着部材は、前記基板と前記シールド部材とを接着していることを特徴とする。この構成により、長期の特性を保証する耐久性及び信頼性に優れた有機エレクトロルミネセンス素子と有機エレクトロルミネセンスを用いた表示装置を提供することができる。

【0025】また、本発明の有機エレクトロルミネセンス素子の製造方法は、前記接着部材を溶融する工程と、前記溶融された接着部材を用いて、前記基板と前記シールド部材とを接着する工程と、を備えた構成よりなる。この構成により、有機エレクトロルミネセンス素子を局部的に加熱することにより熱破壊することなく接着でき、高信頼性の有機エレクトロルミネセンス素子を提供でき、量産性に優れた有機エレクトロルミネセンス素子の製造方法を提供することができる。

【0026】

【発明の実施の形態】本発明の請求項1に記載の発明は、基板と、前記基板上に積層された陽極と有機薄膜層と陰極とを有する積層構造体と、前記積層構造体の外表

面側を覆って前記基板上に設置されたシールド部材と、前記基板と前記シールド部材との間に設置された接着部材と、を備えた有機エレクトロルミネセンス素子であり、外部からの水分や酸素の侵入量を軽減して、陽極と有機薄膜層と陰極の酸化、膨潤等に伴う特性の劣化を抑制するという作用を有する。

【0027】本発明の請求項2に記載の発明は、前記基板上に前記陽極、前記有機薄膜層、前記陰極の順で積層することを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネセンス素子であり、外部からの水分や酸素の侵入量を軽減して、陽極と有機薄膜層と陰極の酸化、膨潤等に伴う特性の劣化を抑制するという作用を有する。

【0028】本発明の請求項3に記載の発明は、前記陽極の一部あるいは全部がカーボン薄膜よりなることを特徴とする請求項1または2に記載の有機エレクトロルミネセンス素子であり、陽極としてのカーボン薄膜と有機薄膜層の密着性を強めるという作用を有する。

【0029】本発明の請求項4に記載の発明は、前記積層構造体が、陽極とカーボン薄膜と有機薄膜層と陰極を基板上に積層して形成したものであることを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネセンス素子であり、カーボン薄膜を介して、陽極と有機薄膜層の密着性を強めるという作用を有する。

【0030】本発明の請求項5に記載の発明は、前記基板上に前記陽極、カーボン薄膜、前記有機薄膜層、前記陰極の順で積層することを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネセンス素子であり、カーボン薄膜を介して、陽極と有機薄膜層の密着性を強めるという作用を有する。

【0031】本発明の請求項6に記載の発明は、前記接着部材の少なくとも一部が、前記基板と前記シールド部材を接着することを特徴とする請求項1～5のいずれかに記載の有機エレクトロルミネセンス素子であり、外部からの水分や酸素の侵入量を軽減して、陽極と有機薄膜層と陰極の酸化、膨潤等に伴う特性の劣化を抑制するという作用を有する。

【0032】本発明の請求項7に記載の発明は、前記有機薄膜層が、前記陽極と前記陰極に電圧を印加したとき発光することを特徴とする請求項1～6のいずれかに記載の有機エレクトロルミネセンス素子であり、発光素子として機能するという作用を有する。

【0033】本発明の請求項8に記載の発明は、前記基板が、透明、半透明の基板の内のいずれか1つからなることを特徴とする請求項1～7のいずれかに記載の有機エレクトロルミネセンス素子であり、発光を外部に導き、液晶照明装置、表示デバイス装置用の素子として機能するという作用を有する。

【0034】本発明の請求項9に記載の発明は、前記接着部材が、低融点ガラス、低融点はんだ、液晶ポリマーの内のいずれか1つからなることを特徴とする請求項1

～8のいずれかに記載の有機エレクトロルミネセンス素子であり、有機薄膜層を破壊することなく低温で基板とシールド部材を接着できるという作用を有する。

【0035】本発明の請求項10に記載の発明は、前記接着部材が、500℃以下の融点を有することを特徴とする請求項1～9のいずれかに記載の有機エレクトロルミネセンス素子であり、有機薄膜層を破壊することなく低温で基板とシールド部材を接着できるという作用を有する。

【0036】本発明の請求項11に記載の発明は、前記低融点ガラスが、 $Pb-B-Sn-Si-Al-O$ 化合物、 $Sn-Pb-O-F$ 化合物、 $Pb-Sn-P-O-Cl$ 化合物、 $PbO-SnO-P_2O_5$ 化合物の低融点ガラスの内のいずれか1つからなることを特徴とする請求項9記載の有機エレクトロルミネセンス素子であり、有機薄膜層を破壊することなく低温で基板とシールド部材を接着できるという作用を有する。

【0037】本発明の請求項12に記載の発明は、前記シールド部材が、電気絶縁性ガラス、ステンレスの内のいずれかからなることを特徴とする請求項1～11のいずれかに記載の有機エレクトロルミネセンス素子であり、外部からの水分や酸素の侵入量を軽減して、陽極と有機薄膜層と陰極の酸化、膨潤等に伴う特性の劣化を抑制できるとともに、その機械的強度と耐食性により、有機エレクトロルミネセンス素子の外力による破損および腐食を防ぐという作用を有する。

【0038】本発明の請求項13に記載の発明は、前記シールド部材が、キャップ形状であることを特徴とする請求項12に記載の有機エレクトロルミネセンス素子であり、有機薄膜層を収納する空間を設けることにより、有機薄膜層を破壊することなく外力から保護するという作用を有する。

【0039】本発明の請求項14に記載の発明は、前記積層構造体と前記シールド部材の間に、前記積層構造体を覆って設置された保護膜を備えたことを特徴とする請求項1～13のいずれかに記載の有機エレクトロルミネセンス素子であり、外部からの水分や酸素が侵入した場合でも陽極と有機薄膜層と陰極の酸化、膨潤等を防ぎ、これに伴う特性の劣化を抑制できるという作用を有する。

【0040】本発明の請求項15に記載の発明は、前記接着部材が低融点はんだからなり、前記保護膜が電気絶縁性化合物層であって、前記陽極と前記陰極とを電気的に絶縁することを特徴とする請求項14に記載の有機エレクトロルミネセンス素子であり、外部からの水分や酸素の侵入量を軽減しまた、たとえ外部からの水分や酸素が侵入した場合でも、陽極と有機薄膜層と陰極の酸化、膨潤等に伴う特性の劣化を抑制できるとともに、導電性のはんだを介して陽極と陰極が短絡することを防ぐという作用を有する。

【0041】本発明の請求項16に記載の発明は、前記保護膜の膜厚が $3\mu m \sim 30\mu m$ であることを特徴とする請求項14に記載の有機エレクトロルミネセンス素子であり、外部からの水分や酸素が侵入した場合でも陽極と有機薄膜層と陰極の酸化、膨潤等を防ぎ、これに伴う特性の劣化を抑制できるという作用を有する。

【0042】本発明の請求項17に記載の発明は、前記保護膜が少なくとも最下層に絶縁性化合物層と最上層に金属層を有する2層以上の積層膜であることを特徴とする請求項14に記載の有機エレクトロルミネセンス素子であり、外部からの水分や酸素が侵入した場合でも陽極と有機薄膜層と陰極の酸化、膨潤等を防ぎ、これに伴う特性の劣化を抑制できるとともに、最上面の金属層によって発熱を伝導、拡散でき、有機薄膜層の熱による特性の劣化を軽減できるという作用を有する。

【0043】本発明の請求項18に記載の発明は、前記基板または前記シールド部材の少なくとも一方の接着面に電気絶縁性パッファ層が設置されることを特徴とする請求項1～17のいずれかに記載の有機エレクトロルミネセンス素子であり、電気絶縁性パッファ層によって、前記基板と前記シールド部材との接着強度を高め、外部からの水分や酸素の侵入量を軽減して、陽極と有機薄膜層と陰極の酸化、膨潤等に伴う特性の劣化を抑制するという作用を有する。

【0044】本発明の請求項19に記載の発明は、前記電気絶縁性パッファ層が SiO_2 、 SiO のいずれかであることを特徴とする請求項18記載の有機エレクトロルミネセンス素子であり、電気絶縁性パッファ層によって、前記基板と前記シールド部材との接着強度を高め、外部からの水分や酸素の侵入量を軽減して、陽極と有機薄膜層と陰極の酸化、膨潤等に伴う特性の劣化を抑制するという作用を有する。

【0045】本発明の請求項20に記載の発明は、前記陰極が Mg を含有する Al 系合金、 Mg と Li を含有する Al 系合金、 Mn を含有する Al 系合金、 Mn と Li を含有する Al 系合金の内のいずれか1つからなることを特徴とする請求項1～19のいずれかに記載の有機エレクトロルミネセンス素子であって、陰極の耐食性を向上し、信頼性を高めるという作用を有する。

【0046】本発明の請求項21に記載の発明は、請求項1～20のいずれか1に記載の有機エレクトロルミネセンス素子と、前記陽極と前記陰極を駆動するために前記基板上に設けた電極駆動用ICと、前記電極駆動用ICを接続するために前記基板上に配設されたリード線と、を備えたことを特徴とする有機エレクトロルミネセンス素子部品であり、液晶照明装置、表示デバイス装置用の部品として機能するという作用を有する。

【0047】本発明の請求項22に記載の発明は、前記リード線が積層構造を有し、上層の導電率が下層の導電率より高いことを特徴とする請求項21に記載の記載の

有機エレクトロルミネセンス素子部品であり、リード線に印加した電圧を効率よく陽極と陰極に伝えて、発光層を駆動できるという作用を有する。

【0048】本発明の請求項23に記載の発明は、前記陰極が積層構造を有し、上層の導電率が下層の導電率より高いことを特徴とする請求項21または22に記載の有機エレクトロルミネセンス素子部品であり、陰極に印加した電圧を効率よく発光層に伝えるという作用を有する。

【0049】本発明の請求項24に記載の発明は、請求項1～20のいずれかに記載の有機エレクトロルミネセンス素子と、前記陽極と前記陰極を駆動する手段と、前記有機エレクトロルミネセンス素子の前面側に設置された液晶パネルと、を備え、前記有機エレクトロルミネセンス素子に電圧を印加することにより照明することとを特徴とする液晶照明装置であり、特性の経時変化が少なく、信頼性が優れるという作用を有する。

【0050】本発明の請求項25に記載の発明は、請求項1～20のいずれかに記載の有機エレクトロルミネセンス素子と、前記陽極と前記陰極を駆動する手段と、前記有機エレクトロルミネセンス素子の前面側に設置された液晶パネルと、を備え、前記有機エレクトロルミネセンス素子にマトリックス方式の電圧を印加することにより表示機能を有することとを特徴とする表示デバイス装置であり、特性の経時変化が少なく、信頼性が優れるという作用を有する。

【0051】本発明の請求項26に記載の発明は、基板上に陽極と有機薄膜層と陰極とを積層して積層構造体を作る工程と、前記基板上に接着部材を介して前記積層構造体の外表面側を被覆するシールド部材を設置する工程と、前記接着部材を溶融する工程と、前記溶融された接着部材を用いて前記基板と前記シールド部材とを接着する工程と、を備えた有機エレクトロルミネセンス素子の製造方法であり、特性の経時変化が少なく、信頼性が優れる有機エレクトロルミネセンス素子を提供できるという作用を有する。

【0052】本発明の請求項27に記載の発明は、前記積層構造体を作る工程が、基板上に陽極とカーボン薄膜と有機薄膜層と陰極とを積層する工程であることを特徴とする請求項26に記載の有機エレクトロルミネセンス素子の製造方法であり、外部からの水分や酸素の侵入量を軽減して、陽極と有機薄膜層と陰極の酸化、膨潤等に伴う特性の劣化を抑制するという作用を有する。

【0053】本発明の請求項28に記載の発明は、前記基板が、透明または半透明の基板であることを特徴とする請求項26または27に記載の有機エレクトロルミネセンス素子の製造方法であり、発光を外部に導き、液晶照明装置、表示デバイス装置用の素子を提供するという作用を有する。

【0054】本発明の請求項29に記載の発明は、前記

接着部材が、低融点ガラス、低融点はんだ、液晶ポリマーの内のいずれか1つからなることを特徴とする請求項26～28のいずれかに記載の有機エレクトロルミネセンス素子の製造方法であり、有機薄膜層を破壊することなく低温で基板とシールド部材を接着できるという作用を有する。

【0055】本発明の請求項30に記載の発明は、前記接着部材を溶融する工程が、レーザ加工を用いて溶融する工程、または、超音波を用いて溶融する工程の内のいずれかからなることを特徴とする請求項26～29のいずれかに記載の有機エレクトロルミネセンス素子の製造方法であり、基板とシールド部材の接合部を局所的に加熱するため、積層構造体の温度上昇を抑え、優れた発光特性と外部からの水分や酸素を遮断して信頼性が優れる有機エレクトロルミネセンス素子を提供できるという作用を有する。

【0056】（実施の形態1）以下に本発明の実施の形態について、図を用いて説明する。

【0057】図1は本発明の一実施の形態における有機エレクトロルミネセンス素子の要部断面図である。

【0058】基板1としては、透明又は半透明なガラス、PET（ポリエチレンテレフタレート）、ポリカーボネート、非晶質ポリオレフィン等が用いられる。また、基板1はこれらの材料を薄膜とした可撓性を有するものやフレキシブル基板1でもよい。

【0059】また、陽極2としては、ITO、ATO（Sbをドープした SnO_2 ）、AZO（AlをドープしたZnO）等が用いられる。

【0060】また、有機薄膜層3は、発光層5のみの単層構造の他に、正孔輸送層4と発光層5又は発光層5と電子輸送層（図示せず。）の2層構造や、正孔輸送層4と発光層5と電子輸送層の3層構造のいずれの構造でもよい。但し、このような2層構造又は3層構造の場合には、正孔輸送層4と陽極2が、又は電子輸送層と陰極6が接するように積層して形成される。

【0061】また、発光層5としては、可視領域で蛍光特性を有し、かつ成膜性の良い蛍光体からなるものが好ましく、 Alq_3 やBe-ベンゾキノリノール（BeBq₂）の他に、2, 5-ビス（5, 7-ジ-*t*-ペンチル-2-ベンゾオキサゾリル）-1, 3, 4-チアジアゾール、4, 4'-ビス（5, 7-ペンチル-2-ベンゾオキサゾリル）スチルベン、4, 4'-ビス〔5, 7-ジ-（2-メチル-2-ブチル）-2-ベンゾオキサゾリル〕スチルベン、2, 5-ビス〔5, 7-ジ-*t*-ペンチル-2-ベンゾオキサゾリル〕チオフィン、2, 5-ビス〔〔5- α , α -ジメチルベンジル〕-2-ベンゾオキサゾリル〕チオフエン、2, 5-ビス〔5, 7-ジ-（2-メチル-2-ブチル）-2-ベンゾオキサゾリル〕-3, 4-ジフェニルチオフエン、2, 5-ビス〔5-メチル-2-ベンゾオキサゾリル〕チオフエ

ン、4、4'-ビス(2-ベンゾオキサゾール)ビフェニル、5-メチル-2-[2-[4-(5-メチル-2-ベンゾオキサゾール)フェニル]ビニル]ベンゾオキサゾール、2-[2-(4-クロロフェニル)ビニル]ナフト[1, 2-d]オキサゾール等のベンゾオキサゾール系、2, 2'-(p-フェニレンジビニレン)-ビスベンゾチアゾール等のベンゾチアゾール系、2-[2-[4-(2-ベンゾイミダゾール)フェニル]ビニル]ベンゾイミダゾール、2-[2-(4-カルボキシフェニル)ビニル]ベンゾイミダゾール等のベンゾイミダゾール系等の蛍光増白剤や、トリス(8-キノリノール)アルミニウム、ビス(8-キノリノール)マグネシウム、ビス(ベンゾ[f]-8-キノリノール)亜鉛、ビス(2-メチル-8-キノリノール)アルミニウムオキシド、トリス(8-キノリノール)インジウム、トリス(5-メチル-8-キノリノール)アルミニウム、8-キノリノールリチウム、トリス(5-クロロ-8-キノリノール)ガリウム、ビス(5-クロロ-8-キノリノール)カルシウム、ポリ[亜鉛、ビス(8-ヒドロキシ-5-キノリノール)メタン]等の8-ヒドロキシキノリン系金属錯体やジリチウムエビンドリジオン等の金属キレート化オキシノイド化合物や、1, 4-ビス(2-メチルスチリル)ベンゼン、1, 4-(3-メチルスチリル)ベンゼン、1, 4-ビス(4-メチルスチリル)ベンゼン、ジスチリルベンゼン、1, 4-ビス(2-エチルスチリル)ベンゼン、1, 4-ビス(3-エチルスチリル)ベンゼン、1, 4-ビス(2-メチルスチリル)2-メチルベンゼン等のスチリルベンゼン系化合物や、2, 5-ビス(4-メチルスチリル)ピラジン、2, 5-ビス(4-エチルスチリル)ピラジン、2, 5-ビス[2-(1-ナフチル)ビニル]ピラジン、2, 5-ビス(4-メトキシスチリル)ピラジン、2, 5-ビス[2-(4-ビフェニル)ビニル]ピラジン、2, 5-ビス[2-(1-ビレニル)ビニル]ピラジン等のジスチルピラジン誘導体や、ナフタルイミド誘導体や、ペリレン誘導体や、オキサジアゾール誘導体や、アルダジン誘導体や、シクロペンタジエン誘導体や、スチリルアミン誘導体や、クマリン系誘導体や、芳香族ジメチリディン誘導体等が用いられる。さらに、アントラセン、サリチル酸塩、ピレン、コロネン等も用いられる。

【0062】また、正孔輸送層4としては、正孔移動度が高く、透明で成膜性の良いものが好ましくTPD等のトリフェニルアミン誘導体の他に、ポルフィン、テトラフェニルポルフィン銅、フタロシアニン、銅フタロシアニン、チタニウムフタロシアニンオキサライド等のポリフィリン化合物や、1, 1'-ビス[4-(ジ-ポートリルアミノ)フェニル]シクロヘキサン、4, 4', 4'-トリメチルトリフェニルアミン、N, N, N', N'-テトラキス(P-ポートリル)-P-フェニレンジアミ

ン、1-(N, N-ジ-ポートリルアミノ)ナフタレン、4, 4'-ビス(ジメチルアミノ)-2-2'-ジメチルトリフェニルメタン、N, N, N', N'-テトラフェニル-4, 4'-ジアミノビフェニル、N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ-m-トリル-4, N, N'-ジフェニル-N, N'-ビス(3-メチルフェニル)-1, 1'-4, 4'-ジアミン、4'-ジアミノビフェニル、N-フェニルカルバゾール等の芳香族第三級アミンや、4-ジ-ポートリルアミノスチルベン、4-(ジ-ポートリルアミノ)-4'-[4-(ジ-ポートリルアミノ)スチリル]スチルベン等のスチルベン化合物や、トリアゾール誘導体や、オキサジザゾール誘導体や、イミダゾール誘導体や、ボリアリールアルカン誘導体や、ピラゾリン誘導体や、ピラズロン誘導体や、フェニレンジアミン誘導体や、アニールアミン誘導体や、アミノ置換カルコン誘導体や、オキサゾール誘導体や、スチリルアントラセン誘導体や、フルオレノン誘導体や、ヒドラゾン誘導体や、シラザン誘導体や、ポリシラン系アニリン系共重合体や、高分子オリゴマーや、スチリルアミン化合物や、芳香族ジメチリディン系化合物や、ポリ3-メチルチオフエン等の有機材料が用いられる。また、ポリカーボネート等の高分子中に低分子の正孔輸送層4用の有機材料を分散させた、高分子分散系の正孔輸送層4も用いられる。

【0063】また、電子輸送層としては、1, 3-ビス(4-tert-ブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール)フェニレン(OXD-7)等のジョキサジアゾール誘導体、アントラキノジメタン誘導体、ジフェニルキノン誘導体等が用いられる。

【0064】また、陰極6としては、Al、In、Mg、Ti等の金属や、Mg-Ag合金、Mg-In合金等のMg合金や、Al-Li合金、Al-Sr合金、Al-Ba合金等のAl合金等が用いられる。特に、本発明の1つであるAl-Mg合金あるいはAl-Li-Mg合金は、低仕事関数でしかも耐食性の優れた金属であり、特に有効である。

【0065】又、上記陰極6上に導電率の高い導電層を積層した構造でも良い。このとき導電層は銅、銀、金、アルミニウム、鉄、ニッケル、モリブデン、白金の内のいずれか1種類又はこれらの合金、あるいは、これらの金属を含む合金からなることとしたものであり、陰極の電気抵抗を低減して、陰極毎の電流値の違いによる発光輝度のばらつきを防止できるという作用を有する。

【0066】また、保護膜7としての絶縁性化合物層は、GeO₂、SiO₂、SiO₃、MoO₃等の酸化物や、AlN、Si₃N₄等の窒化物や、PET等の熱可塑性有機高分子等が用いられるが、特にGeO₂が好ましい。

【0067】本発明の特徴の一つは、ステンレスやガラス等のシールド部材8を用い、これを基板1に低融点ガラス、低融点はんだ、あるいは、液晶ポリマー等の接着

層9で接着し、有機薄膜EL素子を封止していることである。低融点ガラスとしては、 $Pb-B-Sn-Si-Al-O$ 系のT187及び $Sn-P-Pb-O-F$ 系の低融点ガラス、あるいは、 $Pb-Sn-P-O-Cl$ 系低融点ガラス(L. Hu&Z. Jiamg Phys. Chem. Glasses 35 (1993) 38)や $PbO-SnO-P_2O_5$ 系の低融点ガラスを用いることができる。又、低融点はんだとしては、融点が500℃以下のはんだで、錫-鉛系合金、錫-アンチモン系合金、ビスマス系合金等が用いられる。特に、錫-鉛系合金の中では旭硝子社製のセラソルザ(No. 123, No. 143, No. 186, No. 224, No. 246)が好適に用いられる。さらに、シールド部材8と有機エレクトロルミネセンス素子が形成された基板1とが直接低融点ガラスによって接着されもよいし、低融点ガラスとの濡れ性をより良くするために例えば、 SiO_2 、 SiO 等のバッファ層を基板1またはシールド部材8の一方に形成した構造であっても良い。

【0068】シールド部材8と基板1との接着は低融点ガラス、低融点はんだ以外にも、エポキシ樹脂、ポリイミド樹脂等の高分子の接着剤と比べて数段優れた耐湿性を有する液晶ポリマー用いてもほぼ同等の効果があることを確認している。本発明で用いられる液晶ポリマーとは棒状の剛直な高分子であり芳香族ポリエステルの骨格を持つものが多いがアミド結合やエーテル結合を含むものもある。詳しくは高分子学会編「高分子」1994年10月号の特集に記載がある。液晶高分子は固化時に構造変化がほとんどなく固化速度が速い、収縮率が小さい、ガスバリアー性が高いなどの長所があり、カーボランダム社、コダック社、ヘキストセラニーズ社などによって始められ、商品名ベクトラン、ロッドラン、ザイダー等、多くのメーカーから発売されている。しかしながら、これらのものは射出成形、繊維、フィルム等へ応用が始まったばかりであり、特に本発明の有機エレクトロルミネセンスの封止用の樹脂接着剤としては具体的に検討されておらず、最適な使用法及び効果も予測することはできなかった。本発明者らは種々の検討の結果、有機エレクトロルミネセンスの封止用樹脂として用いると従来の樹脂の性能を越えた予想外の効果を得ることができた。

【0069】さらに、本発明により製造される有機エレクトロルミネセンス素子の構成は特に限定されるものではなく、例えば、上記に示した陽極2/正孔輸送層4/発光層5/陰極6以外の構造、陽極2/発光層5/陰極6の単層型素子や陽極2/発光層5/電子輸送層/陰極6の2層型構造及び陽極2/正孔輸送層4/発光層5/電子輸送層/陰極6の3層構造であっても良い。

【0070】また、保護膜としての絶縁性化合物層7の膜厚を管理することにより、また、上に、特に、絶縁性化合物層7上に金属導電膜を積層することにより、さら

に、信頼性が向上する。

【0071】次に、本発明の有機エレクトロルミネセンス素子の製造方法を以下に説明する。

【0072】まず、公知の方法によりガラス等の基板1上に、ITO等からなる陽極2、TPD等からなる正孔輸送層4、 Alq_3 等からなる発光層5、 $Al-Li$ 合金等からなる陰極6を、抵抗加熱蒸着法やイオンビームスパッタ法等により順次成膜し、積層する。また、陰極6上に GeO 等からなる絶縁性化合物層7を形成してもよい。

【0073】次に、接着工程として、基板1に低融点ガラス、あるいは、低融点はんだによりシールド部材8を接着する。

【0074】低融点ガラス、あるいは、低融点はんだによりシールド部材8を接着する方法としては、レーザ光や超音波を用いる方法がある。

【0075】レーザ光を用いる方法では、低融点ガラス、低融点はんだ、あるいは、液晶ポリマーが付着されたシールド部材8を基板1上の所定の位置に固定した後、再度低融点ガラス、あるいは、低融点はんだ部分、又はシールド部材8又は基板1の接着部にレーザ光を照射して、低融点ガラス、あるいは、低融点はんだを熔融して、基板1とシールド部材8を接着する。

【0076】超音波はんだ付け装置を用いる方法では、まずシールド部材8の基板1との接着部に超音波はんだ付け装置により低融点はんだを熔融して付着させ、シールド部材8を基板1上の所定の位置に固定した後、再度低融点はんだ部分を超音波はんだ付け装置により熔融して、基板1とシールド部材8を接着する。

【0077】超音波、又は、レーザ光を用いて、極めて短時間で基板1とシールド部材8を接着できるとともに、加熱温度を低く、かつ、局部的に限定できるので、有機エレクトロルミネセンス素子の破壊を防ぐことができる。

【0078】次に、実施の形態1のさらに具体的な構成を示す。まず、全面にITO膜が形成されたガラスの基板1に所定のパターン形状を形成するように、ITO膜2(膜厚160nm)を塩酸を用いてエッチングする。この基板1を洗剤(セミコクリーン、フルウチ化学社製)で5分間超音波洗浄した後、純水で10分間超音波洗浄し、さらにアンモニア過酸化水素溶液(1:1:5)で5分間超音波洗浄した後、最後に70℃の純水で5分間超音波洗浄を行い、窒素ブローにて水分を飛ばし、最後に250℃の温度で加熱し乾燥させる。この様に洗浄した基板1を抵抗加熱蒸着装置内にセットし、チャンバー内を 2×10^{-6} Torr以下の真空度まで減圧した後、TPDを蒸着源とし約500Åの正孔輸送層4を形成する。続いて、 Alq_3 を蒸着源として約750Åの発光層5を形成する。蒸着速度は特に限定するわけではないが、今回は共に2Å/sで行った。次に、同一

真空層内にて15at%のLiを含むAlLi合金を蒸着源とし、2000Åの膜厚の陰極6を形成する。さらにGeOを蒸発源として、3000オングストロームの膜厚で保護層7を形成する。次に、この素子が形成された基板1を真空チャンバーから取り出し、以下に示す要領で素子の外側にシールド部材8を形成した。まず、シールド部材8にはSUS303 (Fe-Cr-Ni合金)を使用し、基板1と接する部分に低融点ガラスを塗布した。低融点ガラスには商品名T187、岩城硝子(株)製を用い、300メシュ(43μm以下)の粒度とした後、酢酸イソアミルに1%のニトロセルローズを混合させた有機バインダーと重量濃度で12(低融点ガラス)対1(有機バインダー)の割合で混合させ、ハケで接着部分に塗布した。上記塗布終了後、有機バインダーの溶媒を気化させる目的で110℃の温度で10分程度乾燥させた。次いで、このシールド材を電気炉で450℃、15分間加熱して低融点ガラスを溶解させた後取り出して素子が形成されたガラスの基板1に重ね合わせ封止を完成させた。なお、ガラスの基板1とシールド部材8との接着の際には、素子の温度が上昇しないように熱伝導性の良い大きな銅板上で行い、素子の温度がなるべく上昇しないように努めた。この様にして、シールド部材8が低融点ガラスによって接着された有機エレクトロルミネセンス素子を得ることができる。

【0079】(実施の形態2) まず、実施の形態1と同様の方法で、シールド部材8を接合する前までの有機エレクトロルミネセンス素子を作製する。その後、10μm以下の粉末にしたSn-P-Pb-O-F系の低融点ガラス(昭栄化学工業社製)をメチルアルコールと重量濃度で1:1の割合に混合し、ペースト状にしたものをシールド部材8となるHOYA製の1mm厚の白板ガラスに塗布する。白板ガラスは、サンドブラスト法により有機エレクトロルミネセンス素子の構成部分と対向する部分を0.3mmくり貫いた。これにより、シールドガラスが有機エレクトロルミネセンス素子に接触して破壊することを防ぐことができる。なお、サンドブラスト法に変わりホーニング法を用いても良い。次に、有機溶剤を気化させるため、一度100℃で10分間の乾燥工程を行った後、電気炉で300℃、10分間加熱し、取り出して素子が形成されているガラスの基板1に重ね合わせ接着する。以上の方法でガラスをシールド部材8に用いた有機エレクトロルミネセンス素子を完成させることができる。尚、今回使用した低融点ガラスの融点は270℃であるが、組成を調整することで任意の融点のガラスを得ることが可能である。

【0080】(実施の形態3) 図6は、レーザを用いて接着層を接着させる製造方法を示す構成図である。本実施の形態では、YAGレーザを用いた溶接の一例を示す。実施の形態1と全く同様な方法で素子を形成した後、Sn-P-Pb-O-F系等の低融点ガラス9をシ

ールド部材8となる白板ガラスに実施の形態1で示したのと同じ方法で塗布する。YAGレーザ13(ミヤチテクノス社製、型名ML-2330A)から出た光を反射ミラー14で屈折させレンズ15に入射させる。レンズ15によって集光させられた光をX-Yテーブルによって素子を動かしながらシールド部材8の外側から当て低融点ガラスを溶解、接着させる。レーザを用いて接着層を有着させる場合、基板とシールド部材の接着面は、接着部材の融点と同等の温度にまで加熱される必要がある。一方、有機薄膜層は、熱により損傷を受けやすい。本発明によれば、この接着面を局部的に加熱できるので、有機薄膜層を破壊することなく、確実に基板とシールド部材を接着できる。本発明者らは、接着部材の融点、および、局部的温度としての作業温度が500℃以下であれば、本実施例中において使用される有機薄膜層に損傷を与えることなく基板とシールド部材を接着できることを見いだした。

【0081】本実施の形態ではYAGレーザを用いてた例を挙げて示したが、他のCO₂レーザ、エキシマレーザであっても良い。重要なのは、各々のレーザの持つ波長がシールド基板1や低融点ガラスと吸収を起こし、低融点ガラスを溶解させれば良いのであって、それによって基板1材料、シールド部材8、低融点ガラス、レーザを選択すればよい。例えば、レーザの波長に対して低融点ガラスが吸収すれば低融点ガラス自身が溶解、レーザの波長をシールド部材8が吸収すればシールド部材8が暖まりその熱が低融点ガラスに伝わって溶解、レーザの波長を素子が形成されている基板1が吸収すればそれが暖まり、低融点ガラスに伝わって溶解する。したがって、レーザ、低融点ガラス、基板1、シールド部材8の全てにおいて特に限定するものではない。

【0082】(実施の形態4) スパッタリング法により、ガラスの基板1上に膜厚160nmのITO膜を形成した後、ITO膜上にレジスト材(東京応化社製、OFPR-800)をスピンコート法により塗布して厚さ10μmのレジスト膜を形成し、マスク、露光、現像してレジスト膜を所定の形状にパターニングした。次に、このガラスの基板1を60℃で50%の塩酸中に浸漬して、レジスト膜が形成されていない部分のITO膜をエッチングした後、レジスト膜も除去し、所定のパターンのITO膜からなる陽極2が形成されたガラスの基板1を得た。

【0083】次に、このガラスの基板1を、洗剤(フルウチ化学社製、セミコクリーン)による5分間の超音波洗浄、純水による10分間の超音波洗浄、アンモニア水1(体積比)に対して過酸化水素水1と水5を混合した溶液による5分間の超音波洗浄、70℃の純水による5分間の超音波洗浄の順に洗浄処理した後、窒素ブローでガラスの基板1に付着した水分を除去し、さらに250℃に加熱して乾燥した。

【0084】乾燥したガラスの基板1の陽極2側の表面に、 2×10^{-6} Torr以下の真空度まで減圧した抵抗加熱蒸着装置内にて、正孔輸送層4としてTPDを約50nmの膜厚で形成した。

【0085】次に、同様に抵抗加熱蒸着装置内にて、正孔輸送層4上に発光層5としてAlq₃を約75nmの膜厚で形成した。尚、TPDとAlq₃の蒸着速度は、共に0.2nm/sであった。

【0086】次に、同様に抵抗加熱蒸着装置内にて、発光層5上に15at%のLiを含むAl-Li合金を蒸着源として、陰極6を200nmの膜厚で成膜した。

【0087】次に、同様に抵抗加熱蒸着装置内にて、陰極6上にGeOを蒸着源として、絶縁性化合物層7を約3μmの膜厚で形成した。

【0088】次に、絶縁性化合物層7を形成したガラスの基板1を蒸着装置内から取り出し、白板ガラス(HOYA社製、板厚1mm)からなるシールド部材8のガラスの基板1との接着部に、超音波はんだ付け装置(旭硝子社製、サンボンダーUSM-IV)を用いて、周波数50kHz、加熱温度150℃の条件で低融点はんだ(旭硝子社製、セラソルザNo. 123)を付着させた後、シールド部材8をガラスの基板1上に固定し、再度白板ガラスに付着した低融点はんだを超音波はんだ付け装置により、周波数50kHz、加熱温度150℃、振動付加時間20~30秒の条件で溶融して、ガラスの基板1とシールド部材8を接着した。

【0089】以上に方法により有機エレクトロルミネセンス素子を作製し、これを実施の形態4とした。

【0090】(実施の形態5)実施の形態1と同様に、ITO膜からなる陽極2と、TPDからなる正孔輸送層4と、Alq₃からなる発光層5と、Al-Li合金からなる陰極6と、GeOからなる絶縁性化合物層7が積層されたガラスの基板1を作製した。

【0091】次に、絶縁性化合物層7を形成したガラスの基板1を蒸着装置内から取り出し、サンドブラスト法により中央部に深さ0.3mmの凹状部を形成した白板ガラス(HOYA社製、板厚1mm)からなるシールド部材8のガラスの基板1との接着部に、超音波はんだ付け装置(旭硝子社製、サンボンダーUSM-IV)を用いて、周波数50kHz、加熱温度250℃の条件で低融点はんだ(旭硝子社製、セラソルザNo. 246)を付着させた後、シールド部材8をガラスの基板1上に固定し、再度白板ガラスに付着した低融点はんだに、YAGレーザ照射装置(ミヤチテクノス社製、ML-2330A)を用いてレーザ光を照射し、低融点はんだを溶融して、ガラスの基板1とシールド部材8を接着した。

【0092】以上に方法により実施の形態1と同様な有機エレクトロルミネセンス素子を作製し、これを実施の形態5とした。

【0093】(比較例1)実施の形態1、2、3、4、

5で示した本発明の有機エレクトロルミネセンス素子の効果を確認するため、シールド部材8とガラスの基板1との接着にエポキシ樹脂を用いた従来の有機エレクトロルミネセンス素子を作製し、ダークスポットの成長を比較した。従来の有機エレクトロルミネセンス素子に使われたエポキシ樹脂は、主剤にECR-7125、硬化剤にECH-7125(共に住友ベークライト社製)をそれぞれ10:6の割合で混合させたものを用い、50℃で12時間かけて硬化させた。また、シールド部材8には実施の形態1で示したのと同じHOYA製白板ガラスを用いた。比較のための有機エレクトロルミネセンス素子は、接着に用いた樹脂以外は材料、構成、成膜条件全て同じとした。これら3つの素子を60℃で95%の環境槽の中で保存し、ダークスポットの成長を観察した。

【0094】実施の形態1、2と比較例1の3つの有機エレクトロルミネセンス素子におけるダークスポットの経時変化を検討するため、各々を60℃、湿度95%の恒温恒湿槽内に保存し、所定の保存期間毎にダークスポットの平均直径を顕微鏡観察により決定した。その結果を図7を用いて説明する。図7は、本発明の実施の形態における保存期間とダークスポットの成長との関係図である。図より明らかなように、シールド部材8の接着に低融点ガラスを用いた本発明は共にエポキシ樹脂を接着に用いた従来の有機エレクトロルミネセンスと比べてダークスポットの成長が著しく抑えられていることが判る。低融点ガラスを接着剤として用いた本発明によれば有機エレクトロルミネセンス素子の長寿命化を達成できる。

【0095】有機エレクトロルミネセンス素子は高い耐熱性を有しておらず従って接着に用いる低融点ガラスは低い温度で融着可能であることが求められる。そのため、有機エレクトロルミネセンス素子の特性上ガラスを溶融させるための作業温度は500℃以下が好ましいが、材質は特に限定するものではなく、有機樹脂より耐湿性が良いものであればどのようなものであっても良い。

【0096】実施の形態4、5と比較例1の3つの有機エレクトロルミネセンス素子におけるダークスポットの経時変化を検討するため、各々を60℃、湿度95%の恒温恒湿槽内に保存し、所定の保存期間毎にダークスポットの平均直径を顕微鏡観察により決定した。その結果を図8に示す。

【0097】図8は保存期間とダークスポットの平均直径との関係図である。この図に示したように、比較例1の有機エレクトロルミネセンス素子が保存期間とともにダークスポットの平均直径が大きくなるのに対して、実施の形態4、および、5の有機エレクトロルミネセンス素子は、有機エレクトロルミネセンス素子にとって極めて厳しい60℃、湿度95%という環境下においてもダ

ークスポットの平均直径に大きな変化が認められず、ダークスポットの成長が防止されていることが判明した。特に、第1実施例の有機エレクトロルミネセンス素子については、ダークスポットの成長はほぼ完全に防止されていることが明らかとなった。

【0098】（実施の形態6）図2は、本発明の一実施の形態における有機エレクトロルミネセンス素子の要部断面図である。

【0099】図2において、7は保護膜、7aは最下層、7bは上部層、8はガラスキャップ、9は接着層であり、基板1、陽極2、有機薄膜層3、正孔輸送層4、発光層5、陰極6は前述と同様である。

【0100】本実施の形態における有機エレクトロルミネセンス素子が、第1実施の形態と異なっているのは、基板1上に形成された保護膜8が絶縁性化合物からなる最下層7aと、最下層7a上に形成された上部層7bと、を備えた、少なくとも2層以上の積層膜で形成されているとともに、基板1上に接着材9によって接着されたガラスキャップ8を備えており、保護膜7とガラスキャップ8によって、少なくとも有機薄膜層3と陰極6との外表面を封止して、有機薄膜層3や陰極6への水分や酸素の進入を完全に遮断していることである。

【0101】上記構成を有する本実施の形態における有機エレクトロルミネセンス素子の動作は、従来例と同様のものであるので説明は省略する。

【0102】以上のように本実施の形態によれば、少なくとも最下層に絶縁性化合物層7を有する2層以上の積層膜からなる保護膜とガラスキャップにより、陰極6や有機薄膜層3への水分や酸素の進入を完全に遮断することによって、発光層5におけるダークスポットの成長を抑制することが可能になる。

【0103】また、ガラスキャップによって外的要因による保護膜、陰極6、有機薄膜層3、陽極2の損傷を防止することができる。

【0104】尚、本実施の形態においては、保護膜を絶縁性化合物層7aと、絶縁性化合物層7a上に形成した金属膜の2層構造とすれば、保護膜の形成を容易にできるとともに、発光輝度の経時的な低下をより効果的に防止することができる。

【0105】さらに、本実施の形態においては、有機薄膜層3が正孔輸送層4と発光層5からなる2層構造の場合について説明したが、その構造については前述のように特にこれに限定されるものではない。

【0106】具体的に、実施の形態6における構成を説明する。前述の実施の形態の例と同様に、ガラスの基板1上にITO膜からなる陽極2と、TPDからなる正孔輸送層4と、Alq₃からなる発光層5と、Al-Li合金からなる陰極6が積層された有機エレクトロルミネセンス素子を2つ作製した。

【0107】この内の1つには、ガラスの基板1上に少

なくとも正孔輸送層4と発光層5からなる有機薄膜層3と陰極6が封止されるように、イオンビームスパッタ法によりGeO膜からなる保護膜を3μmの膜厚で形成し、シールド部材8を接合する前までの有機エレクトロルミネセンス素子を作製した。これを実施の形態6とする。

【0108】尚、抵抗加熱蒸着方によりGeO膜を形成したが、これは同一蒸着装置内で連続してGeOとAgを成膜できることにより、これらを成膜する間での保護膜中へのダストの進入や付着を防止できるためである。また、GeO膜の成膜方法については、一般的に抵抗加熱抵抗加熱蒸着法よりもイオンビームスパッタ法の方が膜内の内部応力を低減できる。

【0109】（実施の形態7）実施の形態6と同様にして、ガラスの基板1上に少なくとも正孔輸送層4と発光層5からなる有機薄膜層3と陰極6が封止されるように、抵抗加熱抵抗加熱蒸着法によりGeO膜を1μmの膜厚で形成した後、このGeO膜上に抵抗加熱抵抗加熱蒸着法によりAg膜を2μmの膜厚で形成し、シールド部材8を接合する前までの有機エレクトロルミネセンス素子を作製した。これを実施の形態7とする。

【0110】以上の2種類の有機エレクトロルミネセンス素子を実施の形態2と同様の方法でシールド部材を形成し、2種類の有機エレクトロルミネセンス素子を作製した。

【0111】以上の方法により得られた2種類の有機エレクトロルミネセンス素子について、陽極2と陰極6の間に15mA/cm²の定電流を印加して、連続発光試験を行い、発光時間に対する発光輝度の変化を検討した。その結果を図9を用いて説明する。

【0112】図9は連続発光試験における発光時間と相対輝度との関係図である。尚、図9において相対輝度とは、連続発光試験の開始時における発光輝度を1として、各発光時間における発光輝度を相対値として示したものである。この図に示したように、保護膜をGeO膜単体で形成した実施の形態6は、保護膜が3μmであるにもかかわらず、保護膜をGeO膜とAg膜の2層構造とした実施の形態7のほうが、さらに、発光輝度の経時的な低下が小さいことが明らかとなった。

【0113】このような特性の一因としてGeO膜とAg膜の熱伝導性が関係しているものと推測される。すなわち、酸化物や窒化物からなる膜は、一般的に金属膜と比べて内部応力が大きく、熱伝導性に劣る。したがって、実施の形態6に比べて実施の形態7の方が保護膜の熱伝導性が良く、発光によって生じる熱が、保護膜を介して外部に放熱されやすいと考えられる。有機エレクトロルミネセンス素子においては、発光によって生じる熱の放熱性が悪いと有機薄膜層3の劣化を生じ易い。このような関係から、実施の形態7の方が発光輝度の経時的な低下が小さいのではないかと考えられる。

【0114】以上のような結果から、保護膜7としては酸化物や窒化物の単体よりも、酸化物や窒化物等の絶縁性化合物層からなる最下層7aと金属膜からなる上部層7bとの積層構造の方が、発光特性が優れている。さらに、酸化物や窒化物等比べて金属の方が成膜性が優れていること等からも、保護膜7の合計膜厚を $3\mu\text{m}$ ～ $30\mu\text{m}$ とし、その構成を最下層に形成された絶縁性化合物層7aと絶縁性化合物層7上に形成された金属膜7bとすることによって、低融点ガラス9による接着性が不十分であっても、ダークスポットの成長を完全に抑制するとともに、発光輝度の低下が小さい有機エレクトロルミネセンス素子を実現することが可能になると言える。

【0115】（実施の形態8）前述の例と同様に、ガラスの基板1上にITO膜からなる陽極2と、TPDからなる正孔輸送層4と、 Alq_3 からなる発光層5と、 Al-Li 合金からなる陰極6が積層された有機エレクトロルミネセンス素子を作製した。

【0116】このガラスの基板1上に少なくとも正孔輸送層4と発光層5からなる有機薄膜層3と陰極6が封止されるように、抵抗加熱蒸着装置内にて、陰極6上に保護膜として、 GeO 膜を $1\mu\text{m}$ の膜厚で形成した後、連続して Ag 膜を $14\mu\text{m}$ の膜厚で形成した。

【0117】こうして保護膜を形成したガラスの基板1上に、サンドブラスト法により中央部に深さ 0.3mm の凹状部を形成した板厚 1mm の白板ガラスからなるガラスキャップを、UV樹脂（協立化学産業社製、ワードロックNO. 856）を接着材として1ジュールの紫外線を照射することにより硬化させて接着し、図2に示したような有機エレクトロルミネセンス素子を作製した。

【0118】この有機エレクトロルミネセンス素子を、 85°C 、湿度 85% の条件の恒温恒湿槽内に保存し、保存期間に伴うダークスポットの形状の変化を検討した。尚、ダークスポットの形状の経時変化は、所定の時間毎に有機エレクトロルミネセンス素子を恒温恒湿槽から取り出し、実施の形態6、7と同様な方法で発光させた状態で、顕微鏡観察により各ダークスポットの直径を計測し、平均値を求めた。

【0119】（比較例2）また、比較のため保護膜として Ag 膜を形成したことを除いて、実施の形態8と同様に作製した有機エレクトロルミネセンス素子を作製し、これを比較例2とした。

【0120】実施の形態8および比較例2の有機エレクトロルミネセンス素子とともに 85°C 、湿度 90% の恒温恒湿槽内に保存し、保存期間に伴うダークスポットの形状の変化を検討した。尚、ダークスポットの形状の経時変化は、前述と同様な方法により、所定の保存期間が経過した後のダークスポットの平均直径として求めた。その結果を図10を用いて説明する。

【0121】図10は、実施の形態8及び比較例2の有機エレクトロルミネセンス素子の保存試験における保存

期間とダークスポットの平均直径との関係図である。この図に示したように、 85°C 、湿度 90% という実施の形態6、7の評価条件より厳しい、有機エレクトロルミネセンス素子にとって極めて厳しい環境下であっても、ダークスポットの成長はほとんど認められないことが明らかとなった。

【0122】また、この図に示したように、比較例2に対して実施の形態8の有機エレクトロルミネセンス素子では、保存試験の初期からダークスポットの成長が抑制されていることが明らかとなった。

【0123】以上のように、従来の酸化物のみから形成された保護膜を用いる場合に比べて、本実施例のように、最下層に形成された酸化物等の絶縁性化合物層7と、絶縁性化合物層7上に形成された金属膜からなる積層構造の保護膜を用い、さらにシールド部材を低融点ガラスで接着することにより、ダークスポットの成長を抑制できることが実証された。

【0124】（実施の形態9）図3は、本発明の一実施の形態における有機エレクトロルミネセンス素子の要部断面図である。

【0125】図3において、10はカーボン薄膜であり、基板1、陽極2、有機薄膜層3、正孔輸送層4、発光層5、陰極6、保護層7、シールド部材8、及び接着層9は前述と同様のものであるため、同一の符号を付して説明を省略する。

【0126】本実施の形態における有機エレクトロルミネセンス素子が、従来例と異なっているのは、陽極2の上面にカーボン薄膜10が形成されていることであり、陽極2と有機薄膜層3はカーボン薄膜10を介して接合されている。

【0127】カーボン薄膜10は前述した陽極の仕事関数より小さいため、有機薄膜3とのエネルギーギャップが小さくなり、ホール注入性が向上し発光効率が上がる。また、カーボン薄膜10は前述した陽極2と比較して、有機薄膜3との密着性が良好であるため、均一発光性に優れ、且つ安定性に優れたものである。

【0128】ここで、カーボン薄膜はカーボンより構成される薄膜であって、たとえば、カーボンを使用したスパッタリングにより形成される。カーボンターゲットとしては、特に限定するものではないが、等方性グラファイト、異方性グラファイト、ガラス状カーボン等があり、特に、純度の高い等方性グラファイトが適している。

【0129】また、カーボン薄膜がスパッタリング法によって形成される際、電器抵抗を制御するために、窒素あるいは水素と、アルゴンとの混合ガス雰囲気下で反応性スパッタリングが行われる。

【0130】また、一般に、スパッタリング法などによる薄膜形成技術において、 50\AA 以下の薄い膜厚では膜質が島状構造となり、均質な膜質が得ら

れない。そのため、50オングストローム以下の膜厚においては、電気抵抗が高くなり、したがって、電流は流れず、その結果、発光しない。

【0131】他方、1000オングストローム以上の膜厚においては、カーボン薄膜10が黒っぽくなり、その結果、EL光のガラス面からの透過率が低下する。

【0132】ここで、カーボン薄膜10の黒っぽさ、すなわち、光の吸収はコントラストupに有効であり、上記、電気抵抗、透過率、コントラストを考慮して、50オングストロームから500オングストロームが最適である。

【0133】さらに、図3には陽極上にカーボン薄膜が形成されたときのみを示したが、カーボン薄膜単層で陽極としてもかまわない。

【0134】次に、実施の形態9の具体的な構成を示す。市販のITO付きガラスの基板（日本板硝子製、P110E-H-PX）を王水によりエッチングしITOを所望のパターンに形成した後、潜在（ユーマイ化成14、ホワイト7-L）で1時間超音波洗浄、続いてイオン交換水で1時間超音波洗浄、続いてアセトンで30分超音波洗浄、続いてエタノールで1時間超音波洗浄、続いて沸騰エタノール中に5分間浸漬し、自然乾燥する。洗浄後の基板をDCマグネトロンスパッタ装置（730Hアネルバ製）内の基板ホルダーにセットし、チャンバー内を 8×10^{-7} Torr以下の真空度まで減圧した後、東洋ソーダ製カーボンターゲットを用い、窒素／アルゴン混合ガス（窒素2.5%）圧3mTorr、基板温度150℃でカーボンをスパッタし成膜した。この時スパッタリング時間にてカーボン膜厚を50オングストローム、100オングストローム、500オングストロームの3種類を各2枚作製した。

【0135】これらの基板をチャンバー内より取り出し、抵抗加熱蒸着装置内にセットし、チャンバー内を 2×10^{-6} Torr以下の真空度まで減圧した後、TPD

を蒸着源とし約500Åの正孔輸送層4を形成する。続いて、Alq₃を蒸着源として約750Åの発光層5を形成する。蒸着速度は特に限定するわけではないが、今回は共に2Å/sで行った。次に、同一真空室内にて15at%のLiを含むAlLi合金を蒸着源とし、2000Åの膜厚の陰極6を形成する。次に、この素子が形成された基板1を真空チャンバーから取り出し、3種類の基板の各1枚を、以下に示す要領で素子の外側にシールド部材8を形成した。

【0136】白板ガラス（HOYA社製、板厚1mm）からなるシールド部材8のガラスの基板1との接着部に、超音波はんだ付け装置（旭硝子社製、サンボンダーUSM-IV）を用いて、周波数50kHz、加熱温度150℃の条件で低融点はんだ（旭硝子社製、セラソルザNo. 123）を付着させた後、シールド部材8をガラスの基板1上に固定し、再度白板ガラスに付着した低融点はんだを超音波はんだ付け装置により、周波数50kHz、加熱温度150℃、振動付加時間20～30秒の条件で溶融して、ガラスの基板1とシールド部材8を接着した。

【0137】以上に方法により有機エレクトロルミネセンス素子を作製し、これを実施の形態9とした。

【0138】次に、シールド部材8を形成した3種類の有機エレクトロルミネセンス素子を60℃で90%RHの環境下に保存し、未発光部の増加状態を観察した。

【0139】（比較例3）ここで比較のため、実施の形態9と同等であるが、カーボン膜を形成しない有機エレクトロルミネセンス素子を作製し、比較例3とした。

【0140】実施の形態9と比較例3の有機エレクトロルミネセンス素子を60℃90%RHの環境下に100時間保存し、初期状態からの未発光部の増加状態を観察した。結果を（表1）に示す。

【0141】

【表1】

	カーボン膜厚	初期発光（10V印加）		60℃90%RH100時間経過後	
		輝度バラツキ	未発光部数	輝度バラツキ	未発光部数
実施例9	50Å	±3%	20個以下	±3%	20個以下
	100Å	±3%	20個以下	±3%	20個以下
	500Å	±2%	20個以下	±2%	20個以下
比較例3	0Å	±5%	30～50個	±5%	30～50個

【0142】（表1）に示したように、本発明の実施の形態9の有機エレクトロルミネセンス素子では、初期状態での輝度バラツキが、±3%以下、未発光部数が20個以下であるが、比較例3では輝度バラツキが±5%、未発光部数が30個～50個であった。共に、60℃で

90%RHの環境下に100時間保存しても初期発光状態とほとんど変化はなかった。

【0143】すなわち、カーボン膜の形成により、陽極と有機薄膜層の密着性が向上し、初期の発光状態でカーボン膜の形成しない場合と比較して、輝度のバラツキや

未発光部に差が生じる。

【0144】（実施の形態10）陰極の組成が、83at%Al、15at%Li、2at%Mgになるようにした以外は実施の形態1と同様の方法で有機エレクトロルミネセンス素子を作製し、実施の形態10とした。この有機エレクトロルミネセンス素子の初期発光特性と40℃で90%RH環境下に保存したときのダークスポットの平均直径について観察した。

【0145】（比較例4）比較のため、陰極の組成が85at%Al、15at%Liで他は実施の形態10と同様の条件で有機エレクトロルミネセンス素子を作製したものを比較例4とした。

【0146】（比較例5）さらに、陰極の組成が83at%Al、15at%Li、2at%Znで他は実施の形態10と同様の条件で有機エレクトロルミネセンス素子を作製したものを比較例5とした。

【0147】実施の形態10と同様に初期発光特性と40℃で90%RH環境下に保存したときのダークスポットの平均直径について観察した。結果を図13と図14に示す。

【0148】図13は、本発明の実施の形態における輝度と電圧との関係図、図14は、本発明の実施の形態における保存期間とダークスポットの成長との関係図である。

【0149】図13から明らかなように、AlLiMg合金を陰極6に用いた実施の形態10は、AlLi合金を陰極6に用いた比較例4の有機エレクトロルミネセンス素子及びAlLiZn合金を陰極6に用いた比較例5の有機エレクトロルミネセンス素子と比べて輝度特性が向上するのに対して、AlLi合金にZnを添加した陰極6を用いた比較例5の有機薄膜EL素子は、輝度特性が低下し、実施例に対して2～3Vの印加電圧の上昇が見られる。これは、AlLi系合金にMgを加えた陰極6の場合には、仕事関数の増加がないため、輝度特性にほとんど影響しないが、Znを加えた場合、仕事関数が増加するために電圧上昇が起きたと考えられる。実際に、実施の形態10と比較例4、比較例5における組成の陰極6の仕事関数をAC-1（理研計器製）を用いて測定したが、各仕事関数は各々3.6eV、3.65eV、3.8eVとなり、この差が図Xで示した電圧-輝度特性の違いとして現れたと考えられる。

【0150】ただし、図14からわかるように40℃で90%RH環境下に保存したときのダークスポットの平均直径は実施の形態10と比較例4、比較例5の有機エレクトロルミネセンス素子のあいだではほとんど差がなかった。すなわち本発明の実施の形態10の有機エレクトロルミネセンス素子は発光特性が優れ、且つ保存安定性の優れている。

【0151】（実施の形態11）図4は、本発明の一実施の形態における有機エレクトロルミネセンス素子の要

部断面図、図5は本発明の一実施の形態における有機エレクトロルミネセンス素子の平面図である。である。

【0152】図4、5において、11電極駆動用IC、12はリード線である。基板1、陽極2、有機薄膜層3、正孔輸送層4、発光層5、陰極6、保護層7、シールド部材8、及び接着層9は前述と同様のものであるで、同一の符号を付して説明を省略する。

【0153】図7において、陽極2が形成された基板1上に有機薄膜層3が形成され、有機薄膜層3上に正孔輸送層4、発光層5、陰極6が積層されている。また、基板1上には下地層と下地層上に形成された導電層の2層構造からなるリード線12が、各陽極2又は各陰極6と電極駆動用IC11を接続するように配設されている。リード線上の導電層材料としては銅、銀、金、アルミニウム、鉄、ニッケル、モリブデン、白金の内のいずれか1種類又はこれらの合金、あるいは、これらの金属を含む合金からなることとしたものであり、リード線の電気抵抗を非常に小さくすることができるとい作用を有する。

【0154】以上のように本実施の形態によれば、リード線を下地層及び下地層上に形成された下地層よりも導電率の高い導電層からなる2層構造とすることによって、リード線の抵抗を低減し、リード線でのオーム損の違いによる有機薄膜エレクトロルミネセンス素子の発光輝度のばらつきを防止することが可能となる。

【0155】尚、本実施の形態11においては、陽極2と陰極6が直交する線状に形成されたものとしたが、特にこの形状に限定されるものではない。

【0156】ガラスの基板上にスパッタリング法によって厚さ0.16μmのITO薄膜を形成した後、ITO膜上にレジスト材（東京応化社製、OFPR-800）をスピンコート法により塗布して厚さ10μmのレジスト膜を形成し、マスク、露光、現像して、ITO膜上のレジスト膜を所定の形状にパターンニングした。このガラスの基板を60℃で50%塩酸中に浸漬して、レジスト膜が形成されていない部分のITO膜をエッチングしてからレジスト膜を除去し、ITO膜からなる陽極及びリード線の下地層が形成されたガラスの基板を得た。このガラスの基板上の有機薄膜層を形成する部分にのみレジスト材（東京応化社製、OFPR-800）をスピンコート法により塗布して厚さ10μmのレジスト膜を形成し、マスク、露光、現像して、ガラスの基板上に形成されたレジスト膜を所定の形状にパターンニングした。このレジスト膜を形成したガラスの基板を洗剤（フルウチ化学社製、セミコクリーン）で5分間超音波洗浄し、さらに純水で10分間超音波洗浄してから銅めっき液（奥野製薬工業社製、ニューレア）に浸漬して、下地層を電流密度10A/cm²でめっきし、リード線の下地層上に厚さ2μmの銅からなる導電層を形成した。この導電層を形成したガラスの基板上のレジスト膜を除去した後、

洗剤（フルウチ化学社製、セミコクリーン）による5分間の超音波洗浄、純水による10分間の超音波洗浄、アンモニア水1に対して過酸化水素水1と水5を混合した水溶液による5分間の超音波洗浄、70℃の純水による5分間の超音波洗浄の順に洗浄処理した後、窒素ブローでガラスの基板に付着した水分を除去し、さらに250℃に加熱して乾燥した。このように洗浄したガラスの基板の陽極が形成されている部分に蒸着法により、厚さ0.05μmのTPD薄膜からなる正孔輸送層を形成し、さらに正孔輸送層の上面に蒸着法により0.075μmのAlq₃薄膜からなる発光層を形成した後、発光層の上面に所定のマスクを施し、2元蒸着法により厚さ0.25μmのMg-Ag合金薄膜からなる陰極を形成した。このようにして陰極が形成されたガラスの基板上に、電極駆動用ICをCOG実装法により実装した。

【0157】その後、10μm以下の粉末にしたSn-Pb-O-F系の低融点ガラス（昭栄化学工業社製）をメチルアルコールと重量濃度で1:1の割合に混合し、ペースト状にしたものをシールド部材となるHOYA製の1mm厚の白板ガラスに塗布する。本白板ガラスは、サンドブラスト法により有機エレクトロルミネセンス素子の構成部分と対向する部分を0.3mmくり貫いた。これにより、シールドガラスが有機エレクトロルミネセンス素子に接触して破壊することを防ぐことができる。なお、サンドブラスト法に変わりホーニング法を用いても良い。次に、有機溶剤を気化させるため、一度100℃で10分間の乾燥工程を行った後、電気炉で300℃、10分間加熱し、取り出して素子が形成されているガラスの基板1に重ね合わせ接着する。以上の方法でガラスをシールド部材8に用いた有機エレクトロルミネセンス素子を完成させることができる。。

【0158】（比較例6）比較例6として、リード線の下地層に銅をめっきしないことを除いて実施の形態16と同様な方法により、導電層が形成されていない有機エレクトロルミネセンスを作製した。

【0159】以上のようにして作製した実施の形態11及び比較例6による有機エレクトロルミネセンス素子を10Vの直流電圧により駆動させたところ、実施の形態11により作製した有機エレクトロルミネセンス素子の発光部における発光輝度の差は±3%であったのに対して、比較例6により作製した有機薄膜EL素子の発光部における発光輝度の差は±10%であった。

【0160】また、60℃で90%RHに500時間保存後のダークスポットは実施の形態11により作製した有機エレクトロルミネセンス素子と比較例6で示した有機エレクトロルミネセンス素子では大きな違いはなかった。

【0161】従って、実施の形態11に示した本発明では輝度バラツキが少なく保存安定性の優れた有機エレクトロルミネセンス素子が得られる。

【0162】（実施の形態12）ガラスの基板上にスパッタリング法によって厚さ0.16μmのITO薄膜を形成した後、ITO膜上にレジスト材（東京応化社製、OFPR-800）をスピンコート法により塗布して厚さ10μmのレジスト膜を形成し、マスク、露光、現像して、ITO膜上のレジスト膜を所定の形状にパターンニングした。このガラスの基板を60℃で50%塩酸中に浸漬して、レジスト膜が形成されていない部分のITO膜をエッチングしてからレジスト膜を除去し、ITO膜からなる陽極及びリード線が形成されたガラスの基板を得た。このガラスの基板上のレジスト膜を除去した後、洗剤（フルウチ化学社製、セミコクリーン）による5分間の超音波洗浄、純水による10分間の超音波洗浄、アンモニア水1に対して過酸化水素水1と水5を混合した溶液による5分間の超音波洗浄、70℃の純水による5分間の超音波洗浄の順に洗浄処理した後、窒素ブローでガラスの基板に付着した水分を除去し、さらに250℃に加熱して乾燥した。このように洗浄したガラスの基板の陽極が形成されている部分に蒸着法により、厚さ0.05μmのTPD薄膜と0.075μmのAlq₃薄膜が積層された構成からなる有機薄膜層を形成した後、Alq₃薄膜の上面に所定のマスクを施した後、2元蒸着法により厚さ0.25μmのAl-Li合金薄膜からなる下地層を形成した。さらに、下地層上に蒸着法により厚さ0.8μmのAg薄膜からなる導電層を形成し、有機薄膜層上に2層構造の陰極を形成した。このようにして陰極が形成されたガラスの基板上に、電極駆動用ICをCOG（Chip On Glass）実装法により実装した。

【0163】その後のシールド部材形成は実施の形態11と同様の方法で形成した。（比較例7）比較例7として、陰極に導電層を用いず1層とした以外では実施の形態12と同様の方法で有機エレクトロルミネセンス素子を作製した。

【0164】以上のようにして作製した実施の形態12及び比較例7における有機エレクトロルミネセンス素子を5V、8V、10Vの各直流電圧により陰極を共通電極として駆動させたところ、実施の形態12における有機薄膜EL素子の発光部における発光輝度の差はいずれの電圧の場合も±1%であったのに対して、比較例7における有機エレクトロルミネセンス素子の発光輝度の差は±5%であった。

【0165】60℃で90%RHに500時間保存後のダークスポットは実施の形態12により作製した有機エレクトロルミネセンス素子と比較例で示した有機エレクトロルミネセンス素子では大きな違いはなかった。

【0166】従って、実施の形態12に示した本発明では輝度バラツキが少なく保存安定性の優れた有機エレクトロルミネセンス素子が得られる。

【0167】（実施の形態13）ガラスの基板1上に1

ITO膜からなる陽極2と、TPDからなる正孔輸送層4と、 Alq_3 からなる発光層5と、 $Al-Li$ 合金からなる陰極6が積層された有機エレクトロルミネセンス素子を作製し、それを液晶表示のバックライトに使用した。図11にその構造を示す。

【0168】図11は、本発明の実施の形態における有機エレクトロルミネセンス素子をバックライト用の表示パネルに用いた装置の斜視図である。

【0169】有機エレクトロルミネセンスの素子は白色発光を得るために以下に示すような多層構造とした。まず、その作製方法としては $52\text{mm} \times 15\text{mm} \times 1\text{mm}$ サイズのITO付きガラスの基板1上に真空抵抗加熱蒸着法を用いて正孔輸送材となるTPDを500、青色の発光層5となる亜鉛のオキサゾール錯体を300、緑色の発光層5となる Alq_3 を200、赤色の発光層5には1.5mol.%のフェノキサゾンをドーブした200の Alq_3 を順次積層した。続いて陰極材となる Li 濃度10at.%の $Al-Li$ 合金を2000形成した後、真空を破らずに同じチャンバー内で酸化ゲルマニウム(GeO)を5000形成し、チャンバーから取り出す。次にこの素子に封止をするため、1mm厚の白板ガラスの基板1をシールド部材8とし、実施の形態1で用いた低融点ガラスを用いて封止を行う。こうして得られたシールド部材8によって封止を施された図中20の有機エレクトロルミネセンス素子を液晶表示部の背面に配し、液晶モジュールを完成させる。図中16は筐体、17は液晶表示パネル19を制御するためのドライバ、18は外周部の金属フレームである。

【0170】冷陰極管をバックライトに用いた従来の装置では、発光面を均一にするため液晶表示部の背面に拡散板を設けなければならない。これに対し、有機エレクトロルミネセンス素子を用いた本発明の液晶モジュールはと比べて拡散板を必要としないため、薄型化が可能である。

【0171】本実施の形態では白色発光を得るために青色発光層、緑色発光層、赤色発光層を積層した構造についてのみ示したが、発光層5に青色、緑色、赤色の色素を混合した単層型の構造であっても当然のごとくなんら問題とはならない。さらに、各色に用いられる発光材料は特に限定される物ではなく、青色発光材としてはオキサジアゾール誘導体、テトラフェニルシクロペンタジエン等、赤色発光材料にはDCMをドーブした Alq_3 等であっても良い。また、特に携帯用のバックライト、例えば、時計、電卓、電話の表示部に用いられる場合には必ずしも白色光を必要とするわけではなく、青色、緑色、赤色の単色光であっても良い。そのため、発光層5はそれぞれの発光を示す材料のみから形成された構造と成っても良い。

【0172】(実施の形態14)図12に、本発明の実施の形態における有機エレクトロルミネセンス素子をド

ットマトリックス方式の表示パネルに用いた装置の斜視図を示す。

【0173】まず、スパッタリング法によりガラスの基板1上に膜厚160nmのITO膜を形成した後、ITO膜上にレジスト材(東京応化社製、OFPR-800)をスピンコート法により塗布して厚さ10 μm のレジスト膜を形成し、マスク、露光、現像してレジスト膜を幅300 μm 、ピッチ400 μm の線状にパターンニングした。

【0174】次に、このガラスの基板1を60℃で50%の塩酸中に浸漬して、レジスト膜が形成されていない部分のITO膜をエッチングした後、レジスト膜も除去し、陽極2として、幅300 μm 、ピッチ400 μm の線状にパターンニングされたITO電極が形成されたガラスの基板1を得た。

【0175】次に、このガラスの基板1を、洗剤(フルウチ化学社製、セミコクリーン)による5分間の超音波洗浄、純水による10分間の超音波洗浄、アンモニア水1(体積比)に対して過酸化水素水1と水5を混合した溶液による5分間の超音波洗浄、70℃の純水による5分間の超音波洗浄の順に洗浄処理した後、窒素ブローでガラスの基板1に付着した水分を除去し、さらに250℃に加熱して乾燥した。

【0176】乾燥したガラスの基板1のITO電極側の表面に、 $2 \times 10^{-6}\text{Torr}$ 以下の真空度まで減圧した抵抗加熱蒸着装置内にて、正孔輸送層4としてTPD膜を約50nmの膜厚で形成した。

【0177】次に、同様に抵抗加熱蒸着装置内にて、TPD膜上に発光層5として Alq_3 膜を約75nmの膜厚で形成した。尚、TPD膜と Alq_3 膜の蒸着速度は、共に0.2nm/sであった。

【0178】次に、同様に抵抗加熱蒸着装置内にて、 Alq_3 膜上に10at.%の Li を含む $Al-Li$ 合金を蒸着源として、メタルマスクを基板1と蒸着源との間に配し、ITOパターンと直交するように、陰極6である $Al-Li$ 合金電極を幅300 μm 、ピッチ400 μm 、膜厚200nmの形状に形成した。さらに、 $Al-Li$ 合金電極上にイオンビームスパッタ法により膜厚1 μm の GeO 膜と膜厚10 μm の Ag 膜を順次積層して、保護膜7とした。

【0179】さらに、これらの保護膜を形成したガラスの基板1上に、サンドブラスト法により中心部に深さ0.3mmの凹状部を形成した板厚1mmの白板ガラスからなるガラスキャップをシールド部材8として用い、UV樹脂(協立化学産業社製、ワードロックNO. 856)を接着材として1ジュールの紫外線を照射することにより硬化させることで接着して表示パネルを作製した。

【0180】以上の方法により得られた表示パネルのITO電極をプラス側、 $Al-Li$ 合金電極をマイナス側

としてドライバーを接続し、選択した陽極2、陰極6に直流電圧又は直流電流を印加すれば、直交する部分が発光し、ドットマトリックス型の表示デバイスとして使用することができる。

【0181】

【発明の効果】以上のように本発明によれば、ガラスやステンレスのシールド部材を低融点ガラスや低融点はんだにより基板に接着することにより、陰極や有機薄膜層への水分や酸素の進入を完全に遮断し、発光層におけるダークスポットの成長を防止し、発光輝度の経時的な低下を抑制することができることから、有機エレクトロルミネセンス素子の耐久性及び信頼性を著しく向上させることができるという優れた効果を有する。また、外的要因による保護膜、陰極、有機薄膜層、陽極の損傷を防止することができることから、取り扱いや保管、搬送における作業性に優れた有機エレクトロルミネセンス素子を提供することができるという優れた効果が得られる。さらに、カーボンを介して陽極と有機薄膜層を強固に付着して、発光特性の信頼性を向上し、また、リード線及び陰極を導電性の優れる材料で被覆することにより、発光効率を高める。陰極の材料として、Mgを含有するAl系合金、MgとLiを含有するAl系合金、Mnを含有するAl系合金、MnとLiを含有するAl系合金の内いずれか1つにすることによって、陰極の耐食性を向上し、信頼性を高めるという作用を有する。

【0182】また、本発明の有機エレクトロルミネセンス素子の製造方法によれば、陰極や有機薄膜層への水分や酸素の進入を完全に遮断できるシールド部材を簡便にかつ量産性よく形成できるとともに、超音波、又はレーザ光を用いて、極めて短時間で、また局所的に低い加熱温度で基板とシールド部材を接着できることから、有機エレクトロルミネセンス素子を熱破壊することなく、耐久性及び信頼性に優れた有機エレクトロルミネセンス素子を量産性よくかつ低原価で製造することができるという優れた効果が得られる。

【0183】また、本発明の表示装置によれば、発光輝度の経時的な低下が小さく、耐久性及び信頼性に優れた表示装置を提供することができるという優れた効果が得られる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の一実施の形態における有機エレクトロルミネセンス素子の要部断面図

【図2】本発明の一実施の形態における有機エレクトロルミネセンス素子の要部断面図

【図3】本発明の一実施の形態における有機エレクトロ

ルミネセンス素子の要部断面図

【図4】本発明の一実施の形態における有機エレクトロルミネセンス素子の要部断面図

【図5】本発明の一実施の形態における有機エレクトロルミネセンス素子の平面図

【図6】本発明の一実施の形態におけるレーザを用いて接着層を融着させる方法を示す構成図

【図7】本発明の実施の形態における保存期間とダークスポットの成長との関係図

【図8】本発明の実施の形態における保存期間とダークスポットの成長との関係図

【図9】本発明の実施の形態における発光時間と相対輝度との関係図

【図10】本発明の実施の形態における保存期間とダークスポットの成長との関係図

【図11】本発明の実施の形態における有機エレクトロルミネセンス素子をバックライト用の表示パネルに用いた装置の斜視図

【図12】本発明の実施の形態における有機エレクトロルミネセンス素子を用いた液晶照明装置の断面図

【図13】本発明の実施の形態における輝度と電圧との関係図

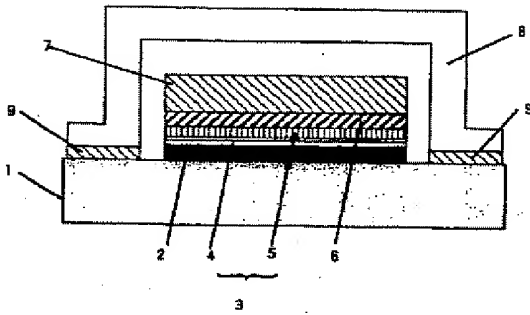
【図14】本発明の実施の形態における保存期間とダークスポットの成長との関係図

【図15】従来の有機エレクトロルミネセンス素子の要部断面図

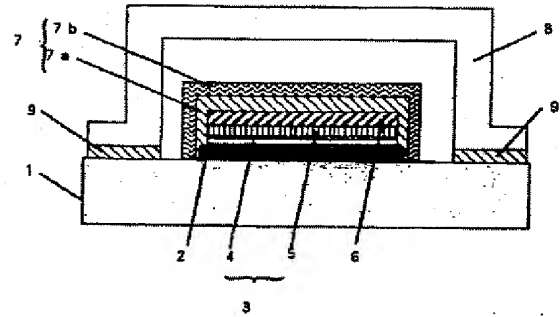
【符号の説明】

- 1 基板
- 2 陽極
- 3 有機薄膜層
- 4 正孔輸送層
- 5 発光層
- 6 陰極
- 7 保護層
- 7a 最下層
- 7b 上部層
- 8 シールド部材
- 9 接着層
- 10 カーボン薄膜
- 11 電極駆動IC
- 12 リード線
- 13 YAGレーザ
- 14 反射ミラー
- 15 レンズ

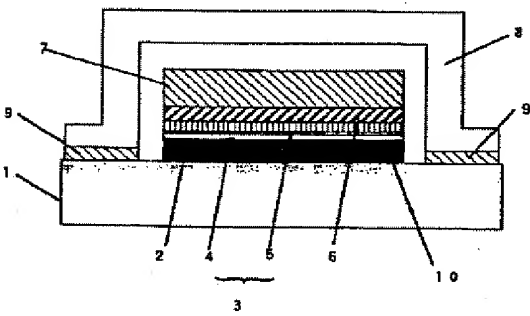
【图 1】



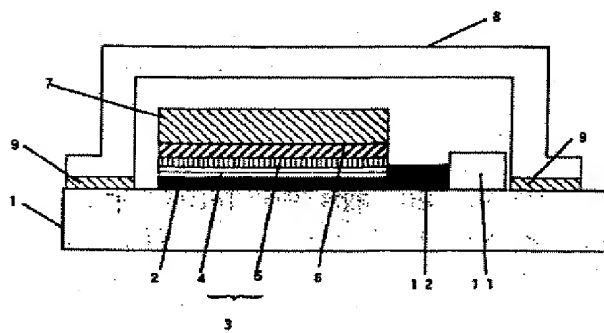
【图 2】



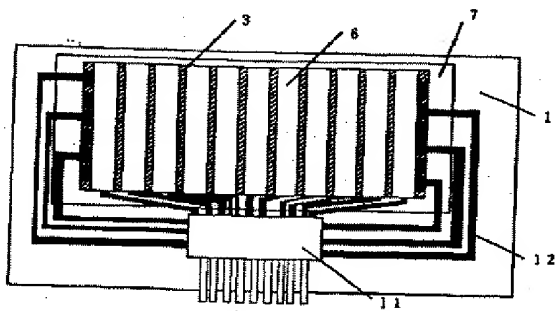
【图 3】



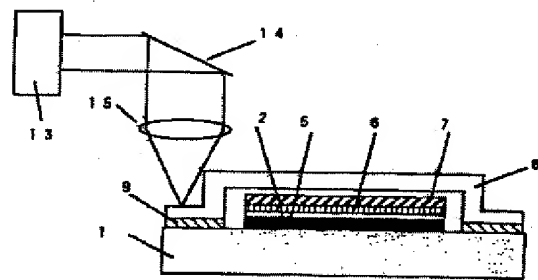
【图 4】



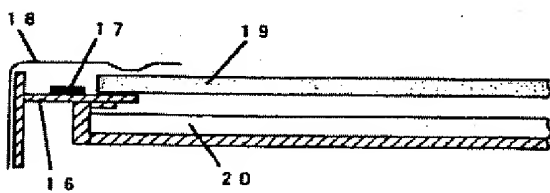
【图 5】



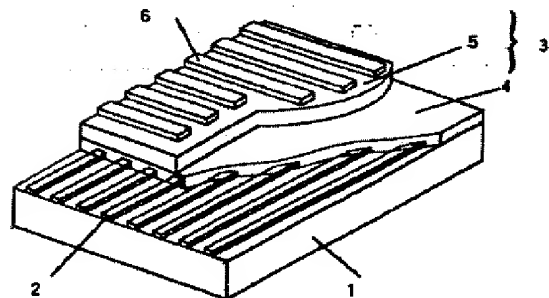
【图 6】



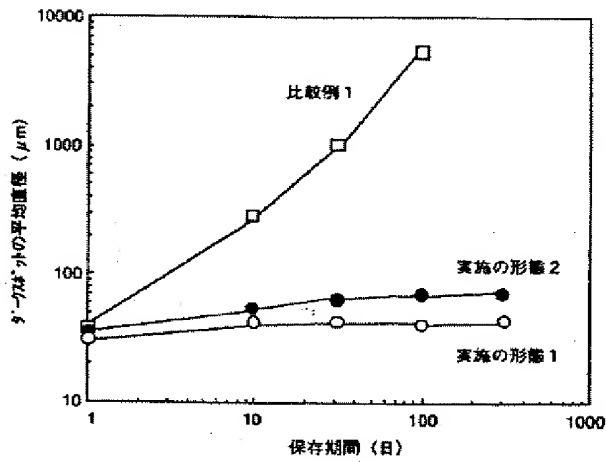
【图 11】



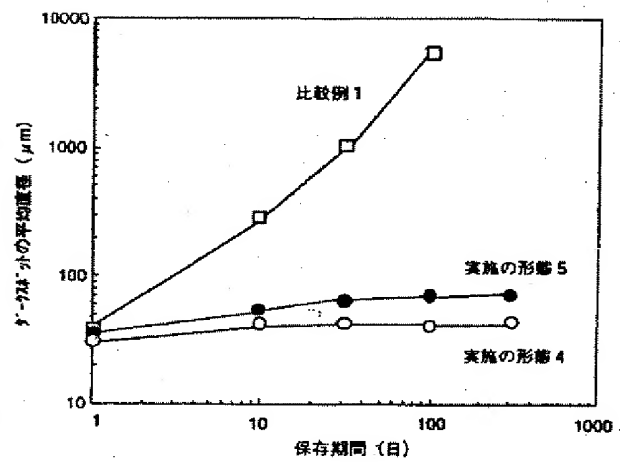
【图 12】



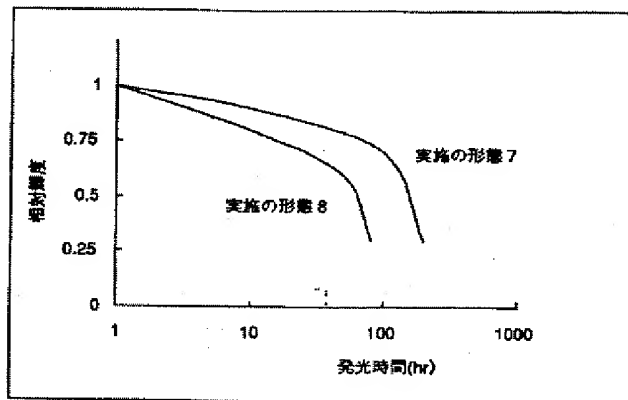
【図 7】



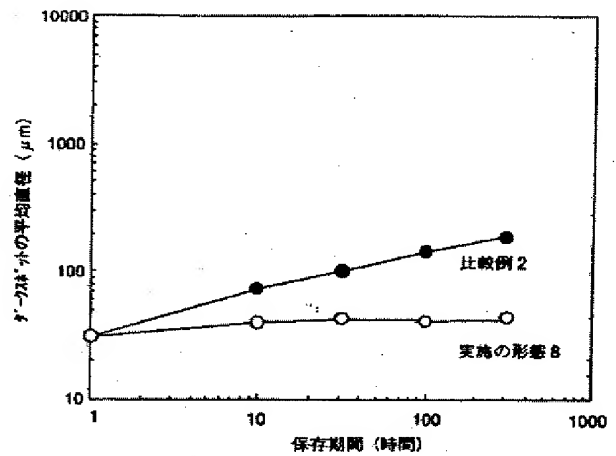
【図 8】



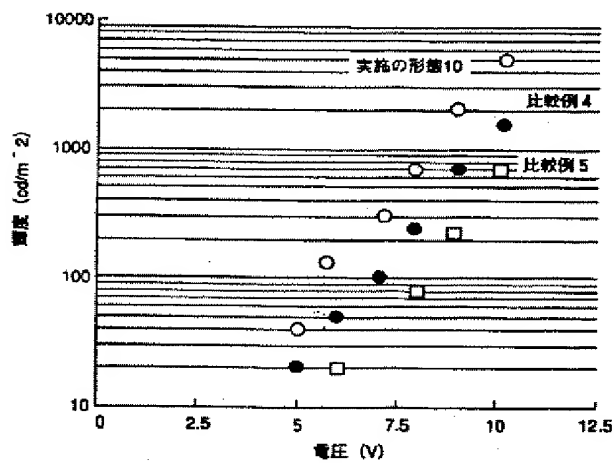
【図 9】



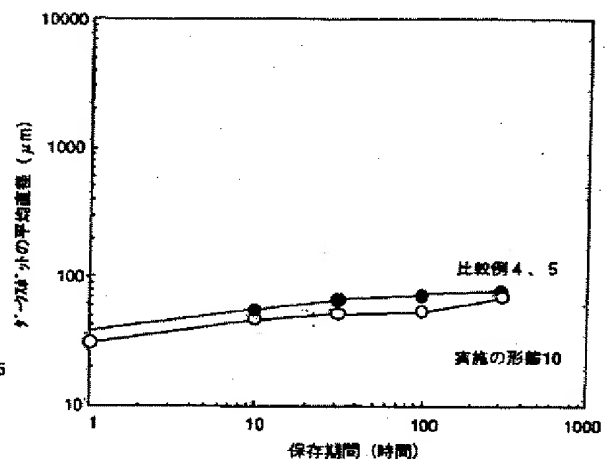
【図 10】



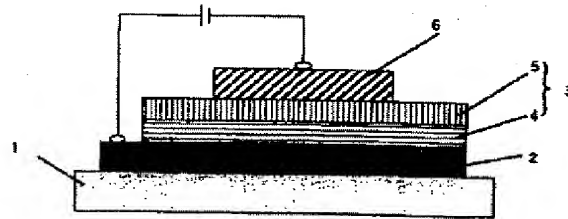
【図 13】



【図 14】



【図15】



フロントページの続き

(51) Int. Cl.⁸
H 0 5 B 33/26

識別記号

F I
H 0 5 B 33/26

(72) 発明者 小松 隆宏
大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

(72) 発明者 坂上 恵
大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内